



REC'D: 23 AUG 2004

WIP

PCT

별첨 사본은 아래 출원의 원본과 동일함을 증명함.

This is to certify that the following application annexed hereto is a true copy from the records of the Korean Intellectual Property Office.

출원 번호 : 10-2004-0016162
Application Number

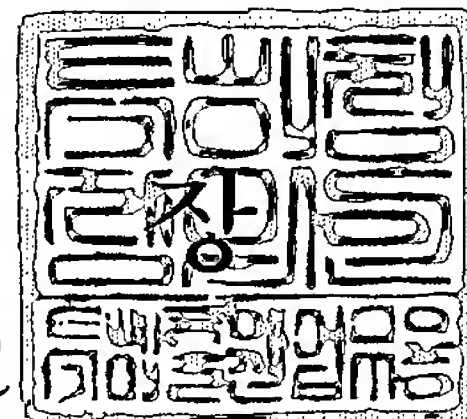
출원 년 월 일 : 2004년 03월 10일
Date of Application MAR 10, 2004

출원인 : (주)퓨얼셀 파워
Applicant(s) FUELCELL POWER, INC.

2004 년 08 월 03 일

특 허 청

COMMISSIONER



PRIORITY DOCUMENT
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH
RULE 17.1(a) OR (b)

【서지사항】

【서류명】	특허출원서
【권리구분】	특허
【수신처】	특허청장
【제출일자】	2004.03.10
【발명의 명칭】	연료전지용 분리판 및 제조방법, 그리고 이러한 분리판을 포함하는 연료전지 스택
【발명의 영문명칭】	SEPARATOR FOR FUEL CELL AND MANUFACTURING METHOD THEREOF, AND FUEL CELL HAVING SUCH A SEPARATOR
【출원인】	
【명칭】	(주)퓨얼셀 파워
【출원인코드】	1-2001-033514-5
【대리인】	
【성명】	이정희
【대리인코드】	9-1999-000323-7
【포괄위임등록번호】	2003-085159-4
【발명자】	
【성명의 국문표기】	김호석
【성명의 영문표기】	KIM,H0 SUK
【주민등록번호】	671113-1019623
【우편번호】	143-203
【주소】	서울특별시 광진구 구의3동 209-13
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	홍병선
【성명의 영문표기】	HONG,BYUNG SUN
【주민등록번호】	600425-1006811
【우편번호】	449-821
【주소】	경기도 용인시 양지면 평창리 300-7, E-3
【국적】	KR
【발명자】	
【성명의 국문표기】	신미남
【성명의 영문표기】	SHINN,MEE NAM
【주민등록번호】	611206-2010710

【우편번호】 463-070

【주소】 경기도 성남시 분당구 야탑동 383-11 #201

【국적】 KR

【심사청구】 청구

【취지】 특허법 제42조의 규정에 의한 출원, 특허법 제60조의 규정에 의한 출원심사를 청구합니다. 대리인
이정희 (인)

【수수료】

【기본출원료】	53 면	38,000 원
【가산출원료】	0 면	0 원
【우선권주장료】	0 건	0 원
【심사청구료】	25 항	909,000 원
【합계】		947,000 원
【감면사유】	소기업 (70%감면)	
【감면후 수수료】		284,100 원

【첨부서류】 1. 소기업임을 증명하는 서류[사업자등록증 및 원천징수이행상황 신고서 사본]_1통

【요약서】

【요약】

연료전지용 분리판 소재로서 층상구조의 흑연호일이 사용되고, 이 흑연호일에 형성된 유로채널의 내면에는 발수층이 함침 형성된다. 이러한 분리판은, 흑연호일에 마스크 패턴을 형성한 상태에서 식각을 통해 유로채널을 형성하고 발수층을 함침하여 제조된다. 이와 같은 분리판에 의하면 연료전지 스택의 성능이 향상되며, 분리판 제조공정이 단순화된다.

【대표도】

도 7

【색인어】

연료전지, 분리판, 흑연호일(graphite foil), 발수층, 열전도도, 유체분배층

【명세서】

【발명의 명칭】

연료전지용 분리판 및 제조방법, 그리고 이러한 분리판을 포함하는 연료전지 스택
 {SEPARATOR FOR FUEL CELL AND MANUFACTURING METHOD THEREOF, AND FUEL CELL HAVING SUCH A
 SEPARATOR}

【도면의 간단한 설명】

도 1은 종래기술에 의한 연료전지 스택의 개략적인 단면을 도시한 도면이다.

도 2는 본 발명의 실시예에 의한 연료전지 스택의 분해사시도이다.

도 3은 본 발명의 실시예에 의한 연료전지 스택의 단위전지에서, 막전극접합체 및 유체분배층의 결합된 구성을 상세히 도시한 단면도이다.

도 4는 본 발명의 실시예에 의한 연료전지 스택의 단위전지(200)에서 환원전극쪽 분리판(260)의 전면(400), 즉, 환원전극쪽 면을 도시한 도면이다.

도 5는 본 발명의 실시예에 의한 연료전지 스택의 단위전지(200)에서 환원전극쪽 분리판(260)의 후면(500), 즉, 환원전극 반대쪽 면을 도시한 도면이다.

도 6은 본 발명의 실시예에 의한 연료전지 스택의 단위전지(200)에서 산화전극쪽 분리판(250)의 후면(600), 즉, 산화전극쪽 면을 도시한 도면이다.

도 7은 도 4의 VII-VII선에 의한 단면도이다.

도 8은 도 6의 VIII-VIII선에 의한 단면도이다.

도 9는 본 발명의 실시예에 의한 연료전지용 분리판 제조방법을 도시한 흐름도이다.

도 10은 본 발명의 실시예에 의한 분리판 제조방법에서 흑연호일에 마스크를 부착하는 과정을 설명하기 위한 도면이다.

도 11은 본 발명의 제2실시예에 의한 도 6의 XI-XI선에 따른 단면도이다.

【발명의 상세한 설명】

【발명의 목적】

【발명이 속하는 기술분야 및 그 분야의 종래기술】

- <12> 본 발명은 연료전지(fuel cell)에 관한 것으로, 더욱 상세하게는, 흑연호일을 그 소재로 하는 연료전지용 분리판(separator) 및 그 제조방법, 그리고 이러한 분리판을 포함하는 연료전지 스택(stack)에 관한 것이다.
- <13> 주지하는 바와 같이 연료전지는, 산화전극(anode)에서의 산화반응 및 환원전극(cathode)에서의 환원반응을 이용하여 전력(electric power)을 생성하게 된다. 산화/환원 전극에는 산화 및 환원 반응을 촉진시키기 위해 백금 또는 백금-루테튬 금속 등을 이용한 촉매층이 형성된다.
- <14> 산화전극에는 연료가스(일예로 수소)가 공급되어 산화반응을 통해 이온(즉, 일예로 프로톤) 및 전자로 분리되고, 환원전극에서는 상기 분리된 이온과 환원가스(일예로, 산소)가 결합해 물을 형성하게 된다. 이와 같은 반응의 결과 생성되는 최종 부산물은, 전기(즉, 산화전극으로부터 환원전극으로의 전자의 이동), 물(즉, 수소와 산소의 결합), 및 열이다. 이러한 열을 제거하기 위해 연료전지 스택에는 통상적으로 냉각장치가 구비된다.
- <15> 환원전극(cathode)에서 생성되는 물은, 수증기 또는 액체의 형태로 생성되는데, 이러한 물은 통상적으로 환원전극(cathode)쪽으로 환원가스(산소 혹은 공기)를 강하게 소통시켜 제거한다.
- <16> 도 1은 종래기술에 의한 연료전지 스택의 개략적인 단면을 도시한 도면이다.

- <17> 통상적으로 하나의 연료전지 스택(100)은 복수 개의 단위전지(100)(unit cell)가 적층되어 형성되게 된다.
- <18> 이러한 단위전지(100)에는 프로톤교환막(110)(일예로, 고분자전해질 막)이 포함되는데, 이 프로톤교환막(110)의 양측면에 산화전극(anode)(121) 및 환원전극(cathode)(122)이 형성되고, 이러한 프로톤교환막(110) 및 전극(121,122)은 열간압착(hot press)에 의하여 막전극접합체(membrane electrode assembly; MEA)(130)를 형성하게 된다. 상기 막전극접합체(130)의 전극(121,122) 외측으로는 유체분배층(125)이 형성되어 있다.
- <19> 인접한 단위전지들의 막전극접합체(130)들은, 분리판(150)에 의해 서로 분리되면서 지지되게 된다. 이러한 분리판(150)에는, 연료가스(일예로, 수소 혹은 직접메탄올 연료전지인 경우는 메탄올)를 산화전극에 공급하기 위한 유로(151) 및 환원가스인 산소 혹은 공기를 환원전극에 공급함과 아울러 물을 배출시키기 위한 유로(152)가 형성되어 있다. 상기 분리판(150)과 막전극접합체(130) 사이에는, 유로(151,152)를 통하여 전달되는 기체 또는 액체가 누출되지 아니하도록 가스켓(160)이 구비된다.
- <20> 상기의 막전극접합체(130), 분리판(150) 및 가스켓(160)을 포함하는 단위전지(100)는 직렬로 적층되어 고전압(high voltage)을 형성하게 된다. 이와 같이 적층된 단위전지들은, 일예로 그 양끝에서 전류집전체(Current Collector) 및 엔드플레이트(170)로 체결되게 된다.
- <21> 이러한 설명에서도 알 수 있는 바와 같이, 연료전지의 분리판은, 연료전지 스택 내에 반응가스(즉, 연료가스 및 환원가스)를 분배하고, 연료가스(일예로 수소 또는 메탄올)와 환원가스(일예로 산소 또는 공기)가 서로 섞이지 않도록 분리하며, 또한 인접한 단위전지의 산화전극과 환원전극 사이에서 전자의 통로를 제공함으로써 이들을 전기적으로 서로 연결하게 된다. 또한,

연료전지 스택의 산화환원 반응에 의해 생성된 열을 배출하기 위한 구조를 구비하고 있으며, 적층된 단위전지들의 기계적인 지지체 기능을 구비하게 된다.

- <22> 연료전지 운전시 산화전극에서 발생한 수소이온(즉, 프로톤)이 고분자전해질 막을 통해 환원 전극쪽으로 이동을 촉진하기 위해서는, 적절한 수분에 의해 고분자전해질 막이 수화(hydrated) 되어야 한다. 이렇게 수화된 고분자전해질 막을 통해, 전자는 이동이 차단되고, 수소이온은 이동하게 되는 것이다.
- <23> 그런데, 고분자전해질 막의 수화된 정도가 낮은 경우에는 고분자전해질 막의 이온 전도도가 감소하게 되고, 따라서 연료전지의 성능이 감소되게 된다. 그러나 반대로 고분자전해질 막이 지나치게 수화되면, 반응3상계면을 형성하는 작은 기공들을 막게 되어(흔히, 플러딩(flooding)이라 한다) 전극 반응 면적이 감소되는 결과, 연료전지 성능이 저하하게 된다.
- <24> 따라서, 환원전극에서 발생하는 물이 원활히 배출되지 않는 경우에는 공급가스가 축매층으로 전달되는 것을 막아 연료전지의 성능이 저하되게 된다.
- <25> 또한, 일예로 미국특허 제4,988,583호를 포함한 다양한 분리판에서는 연료/환원가스용의 유로를 사형(serpentine)으로 형성하고 있는데, 이는 유로 상의 압력 강하를 이용해 환원전극쪽에 생성된 물을 원활히 배출하기 위함이다.
- <26> 그런데, 환원전극쪽에서 생성되는 물은, 환원가스 유로채널의 초입에서는 수증기의 형태로 존재하나, 환원가스 유로채널을 이동함에 따라 액체/수증기가 혼재된 2상(two phase) 상태를 형성하게 된다. 이 경우 액화된 물방울은 환원전극의 기공을 막게 되어, 축매층의 유효한 활성면적이 줄어들게 된다. 또한, 액상의 물을 배출하기 위해서 높은 압력으로 환원가스를 공급하는 것이 필요하게 된다.

- <27> 따라서, 환원가스의 입구/출구 압력차에 의한 에너지 손실이 발생되고, 또한, 빠른 유속으로 안정된 환원반응을 구현하기 위해서는 다량의 반응기체를 소비하게 된다. 따라서, 사형유로를 구비한 분리판에서의 물 배출 성능이 안정화되고 효율화된다면, 이는 환원가스의 입구/출구 압력차에 의한 에너지 손실을 저감할 수 있게 됨과 아울러, 반응기체 소비량을 줄일 수 있을 것이 기대되는 것이다.
- <28> 고분자전해질 연료전지용 분리판으로는 흑연 혹은 복합탄소계 소재가 널리 사용되고 있다. 흑연 및 복합탄소계 소재는 연료전지에서 일어나는 산화환원반응에 내부식성이 강하며 금속재료(일례로 스테인레스)에 비해 체적밀도가 적은 장점이 있다.
- <29> 흑연 혹은 복합탄소계의 소재를 분리판 소재로 사용하는 경우에 종래기술에 의하면, 상기 분리판 소재의 미세기공을 채워 수소이온의 이동을 막기 위해 그리고 몰딩(molding)시 용이한 성형(forming)을 위해, 서모세팅(thermosetting) 또는 서모플라스틱(thermoplastic)과 같은 수지(resin)를 소재 내에 함유하는 것이 통상적이다. 그러나, 이와 같이 분리판에 내포된 수지(resin)는 연료전지 운전시 전자의 이동에 관해 체적저항이 증가하게 되어 성능 감소를 유발하고, 또한, 셀간의 접촉저항을 증가시키는 원인이 되게 된다.
- <30> 이와 같이 분리판에 내포된 수지에 의해 발생하는 셀간 접촉저항 증가를 줄이기 위해, 일례로, 유럽 공개특허 EP1253657A1에서는 분리판 유로의 리브(rib) 표면을 알칼리 용액(alkaline solution)에서 에칭(etching)하여 리브(rib) 표면 부분의 수지(resin)를 제거하고 있다.
- <31> 이와 같이, 흑연 혹은 복합탄소계 소재를 이용하여 안정된 분리판의 형성과정은, 종래기술에 의하면 매우 복잡하고 비생산적, 비효율적인 과정에 의하였다. 따라서, 흑연 혹은 복합탄소계 소재를 이용하여, 고성능이며 대량생산에 적합한 분리판 및 그 제조방법을 제공할 수 있다면,

이는 분리판의 성능의 향상뿐만 아니라 분리판 생산원가, 나아가서는 연료전지의 생산원가를 현저히 감소시킬 수 있을 것이 기대되는 것이다.

【발명이 이루고자 하는 기술적 과제】

<32> 따라서, 본 발명은 이와 같은 문제점을 해결하기 위한 것으로서, 본 발명의 목적은 물 배출 성능이 향상되고, 내구성이 향상되며, 대량생산에 더욱 적합한 연료전지용 분리판 및 그 제조방법, 그리고 이러한 분리판을 포함하는 연료전지를 제공하는 것이다.

【발명의 구성】

<33> 상기 목적을 달성하기 위하여 본 발명에 의한 연료전지용 분리판은,

<34> 연료전지의 막전극접합체(MEA)의 산화전극 또는 환원전극에 유체분배층을 개재하여 밀착되고, 상기 유체분배층과의 사이에서 유체의 통로가 되는 유로채널이 형성된 연료전지용 분리판으로서,

<35> 상기 분리판은 층상구조의 흑연호일을 포함하며,

<36> 상기 유로채널의 내면에는, 발수층(hydrophobic layer)이 그 표면으로부터 함침(impregnation)형성된 것을 특징으로 한다.

<37> 상기 층상구조의 흑연호일은, 그 내부에 스테인레스 층을 포함하는 것으로 할 수 있다. 이 때, 상기 스테인레스 층은 상기 발수층을 개재하여 외부에 노출되는 것이 바람직하다.

<38> 상기 흑연호일은, 서모세팅(thermosetting) 또는 서모플라스틱(thermoplastic)의 수지(resin)가 실질상 배제된 것이 바람직하다.

<39> 상기 흑연호일은, 그 체적밀도가 1.5g/cm^3 내지 2.0g/cm^3 의 범위에 포함되는 것이 바람직하다.

- <40> 상기 흑연호일은, 그 두께가 0.5mm 내지 3mm 의 범위에 포함되는 것이 바람직하다.
- <41> 상기 발수층은, 그 두께가 30 μ m 내지 100 μ m의 범위에 포함되는 것이 바람직하다.
- <42> 상기 분리판에는 하나 이상의 매니폴드가 형성되고, 상기 하나 이상의 매니폴드 및 상기 유체 분배층에 밀착하는 영역, 각각의 둘레에는 실링부재가 상기 분리판에 일체화되는 것이 바람직하다.
- <43> 상기 실링부재는, 상기 하나 이상의 매니폴드 및 상기 유체분배층에 밀착하는 영역, 각각을 폐곡선으로 감싸는(enclose) 것이 바람직하다.
- <44> 상기 목적을 달성하기 위한 본 발명에 의한 분리판 제조방법은,
- <45> 연료전지의 막전극접합체(MEA)의 산화전극 또는 환원전극에 유체분배층을 개재하여 밀착되고, 상기 유체분배층과의 사이에서 유체의 통로가 되는 유로채널이 형성된 연료전지용 분리판을 제조하는 방법으로서,
- <46> 설정된 규격의 흑연호일을 준비하는 단계;
- <47> 상기 흑연호일에, 상기 유로채널에 대응하는 마스크 패턴(mask pattern)을 형성하는 단계;
- <48> 상기 마스크 패턴이 형성된 흑연호일을 식각함으로써 상기 흑연호일에 유로채널을 형성하는 단계;
- <49> 상기 유로채널의 내면에, 발수층(hydrophobic layer)을 함침 형성하는 단계; 및
- <50> 상기 흑연호일로부터 상기 마스크 패턴을 제거하는 단계;를 포함하는 것을 특징으로 한다.
- <51> 상기 마스크 패턴(mask pattern)을 형성하는 단계는, 일예로,
- <52> 상기 흑연호일을 건식 필름(DFR; Dry Film Resistor)으로 코팅하는 단계;
- <53> 상기 코팅된 흑연호일을 노광하는 단계; 및

- <54> 분무형 현상기의 분무노즐을 이동하면서 상기 판의 건식 필름을 현상하는 단계를 포함하는 것이 바람직하다.
- <55> 상기 마스크 패턴(mask pattern)을 형성하는 단계는, 다른 예로서,
- <56> 고무(rubber) 또는 스테인레스 소재로서, 상기 유로채널에 대응되는 패턴이 새겨진 마스크를 상기 흑연호일에 부착하여 형성하는 것이 바람직하다.
- <57> 상기 흑연호일에 유로채널을 형성하는 단계는,
- <58> 샌드블라스터(sand blaster) 과정 및 초음파식각(ultrasonic etching)과정 중 하나 이상의 과정을 포함하는 것이 바람직하다.
- <59> 상기 발수층(hydrophobic layer)을 함침 형성하는 단계는,
- <60> 상기 마스크 패턴이 부착되고 상기 유로채널이 형성된 상태에서 상기 흑연호일 상에 발수층을 형성하는 단계; 및
- <61> 상기 발수층이 형성된 흑연호일을 50℃ 내지 90℃의 온도범위에서 건조시키는 단계를 포함하는 것이 바람직하다.
- <62> 상기 발수층을 형성하는 단계는,
- <63> 상기 흑연호일 표면에 발수액을 스프레이코팅(spray coating)하거나, 상기 발수액에 흑연호일을 디핑(dipping)하는 것이 바람직하다.
- <64> 상기 유로채널이 상기 분리판의 전면 및 후면에 형성되는 바이폴라 구조의 분리판인 경우에,
- <65> 상기 마스크 패턴은 전면 마스크 패턴 및 후면 마스크 패턴을 포함하되,
- <66> 상기 전면 및 후면 마스크 패턴 각각에는 하나 이상의 얼라인 홀이 형성되고,

- <67> 상기 흑연호일에는 상기 마스크 패턴의 얼라인 홀에 대응되는 하나 이상의 얼라인 홀이 형성되어,
- <68> 상기 마스크 패턴의 얼라인 홀 및 상기 흑연호일의 얼라인 홀은 이에 대응되는 하나 이상의 얼라인 봉을 이용하여 얼라인되는 것이 바람직하다.
- <69> 상기 하나 이상의 얼라인 홀, 및 하나 이상의 얼라인 봉은, 크기가 다른 복수개의 얼라인 홀 및 얼라인 봉을 각각 포함하는 것이 바람직하다.
- <70> 상기 목적을 달성하기 위한 본 발명에 의한 연료전지 스택은,
- <71> 적어도 하나 이상의 단위전지를 구비하는 연료전지 스택(stack)으로서,
- <72> 상기 단위전지는,
- <73> 고분자 전해질막과 그 양쪽 면에 각각 형성되는 산화전극과 환원전극을 포함하는 막전극접합체(MEA);
- <74> 상기 막전극접합체 양쪽 면에서 상기 산화전극 및 환원전극에 각각 인접하도록 배치되는 한 쌍의 유체분배층; 및
- <75> 상기 각각의 유체분배층의 바깥쪽 면에 밀착 결합되며, 상기 유체분배층을 대하는 표면에 유로채널이 형성되어 반응영역을 이루고, 이 반응영역의 주변부에 매니폴드(manifold) 영역이 형성되는 한 쌍의 분리판을 포함하되,
- <76> 상기 한 쌍의 분리판 중 하나 이상의 분리판은 층상구조의 흑연호일을 포함하며,
- <77> 상기 하나 이상의 분리판의 유로채널의 내면에는 발수층(hydrophobic layer)이 그 표면으로부터 함침되어 형성되는 것을 특징으로 한다.

- <78> 상기 층상구조의 흑연호일은, 그 내부에 스테인레스 층을 포함하는 것으로 할 수 있다. 이 때, 상기 스테인레스 층은 상기 발수층을 개재하여 외부에 노출되는 것이 바람직하다.
- <79> 상기 흑연호일은, 서모세팅(thermosetting) 또는 서모플라스틱(thermoplastic)의 수지(resin)가 실질상 배제된 것이 바람직하다.
- <80> 상기 흑연호일은, 그 체적밀도가 1.5g/cm^3 내지 2.0g/cm^3 의 범위에 포함되는 것이 바람직하다.
- <81> 상기 흑연호일은, 그 두께가 0.5mm 내지 3mm 의 범위에 포함되는 것이 바람직하다.
- <82> 상기 발수층은, 그 두께가 $30\mu\text{m}$ 내지 $100\mu\text{m}$ 의 범위에 포함되는 것이 바람직하다.
- <83> 상기 매니폴드 외곽과 상기 반응영역 외곽을 따라 실링부재가 상기 분리판과 일체화되는 것이 바람직하다.
- <84> 이하, 본 발명의 실시예를 첨부된 도면을 참조로 상세히 설명한다.
- <85> 이하의 설명에서는, 설명의 편의상, 상부/하부, 전면/후면 등과 같이 방향을 지칭하는 용어들이 사용된다. 그러나, 이러한 용어는 설명과 이해의 편의를 위한 것으로서, 본 발명에서 반드시 그러한 방향으로 특정한 구성요소가 배치되어야 함을 의미하는 것은 아니다.
- <86> 도 2는 본 발명의 실시예에 의한 연료전지 스택의 분해사시도이다.
- <87> 도 2에 도시된 바와 같이 본 발명의 실시예에 의한 연료전지 스택은, 적층된 복수개의 단위전지(200)를 포함한다. 상기 적층된 단위전지(200)들은, 그 전후의 엔드플레이트(290)에 의해 결합된다. 상기 엔드플레이트(290)에는 전류집전체(Current Collector)(295)가 형성되어 연료전지 스택 전체에서 발생하는 전기를 외부에 공급하게 된다.

- <88> 연료전지 스택에 체결압력을 가하는 상기 엔드플레이트(290)에는 연료전지 스택 내부로 반응 가스 등을 공급 및 배출하기 위하여 다수의 연결구(270)가 형성된다. 연결구(270)는 수소공급구(271), 냉각수공급구(272), 공기공급구(273), 공기배출구(274), 냉각수배출구(275) 및 수소배출구(276)를 포함하며, 이들 연결구(271~276) 각각은 연료전지 스택(100) 내의 대응되는 매니폴드에 연결된다.
- <89> 각 단위전지(200)는, 막전극접합체(230)의 전후에 유체분배층(225)이 결합되고, 상기 유체분배층(125)이 결합된 막전극접합체(230) 전후로 분리판(250,260)이 형성된다. 이하에서는, 도 2의 좌측을 단위전지(200)의 전방으로, 도 2의 우측을 단위전지(200)의 후방으로 지칭하여 설명하기로 한다.
- <90> 전술한 유체분배층(225)은, 흔히 가스확산층(gas diffusion layer; GDL)이라고 호칭되는 것이다. 그러나, 유체분배층(225)을 통해 확산/분배되는 것이 반드시 가스형태일 필요는 없다는 취지에서, 가스확산층이라는 통상적인 용어를 대신하여 유체분배층이라는 용어를 사용하기로 한다.
- <91> 도 3은 본 발명의 실시예에 의한 연료전지 스택의 단위전지(200)에서, 막전극접합체(230) 및 유체분배층(225)의 결합된 구성을 상세히 도시한 단면도이다.
- <92> 도 3에 도시된 바와 같이, 본 발명의 실시예에서는, 고분자전해질막(210)의 전방 및 후방에 산화전극(221) 및 환원전극(222)이 각각 압착 형성되고, 상기 산화전극(221) 및 환원전극(222) 각각의 외측에는 유체분배층(225)이 형성된다.
- <93> 다시 도 2를 참조로, 유체분배층(225)이 형성된 막전극접합체(230)의 환원전극쪽에는 환원전극쪽 분리판(260)이, 그리고 산화전극쪽에는 산화전극쪽 분리판(250)이 밀착된다.

- <94> 이하 본 발명의 실시예에 관한 설명에서는, 상기 산화전극쪽 분리판(250)은 모노폴라(monopolar) 구조로, 상기 환원전극쪽 분리판(260)은 바이폴라(bipolar) 구조로 형성되는 것으로 설명한다. 그러나, 본 발명의 보호범위가 여기에 한정된 것으로 해석되어서는 안된다. 막전극접합체(230)의 전후방에 분리판을 배치하는 다양한 다른 구조에도 본 발명의 기술적 사상은 적용가능하기 때문이다.
- <95> 분리판(250,260)은 유체분배층(225)의 바깥쪽 면에 밀착 결합되며, 유체분배층에 밀착되는 표면에 다수개의 유로채널이 형성된다. 분리판(250,260)의 유로채널은 유체분배층(225)과 분리판(250,260)의 사이에서 반응가스의 통로로 사용된다.
- <96> 이러한 분리판(250,260)은, 연료전지 스택 내에 반응가스를 분배하고, 연료가스와 환원가스가 서로 섞이지 않도록 분리하며, 또한 인접한 단위전지의 산화전극과 환원전극 사이에서 전자의 통로를 제공함으로써 이들을 전기적으로 서로 연결하게 된다. 또한, 연료전지 스택의 산화환원 반응에 의해 생성된 열을 배출하기 위한 구조를 구비하고 있으며, 적층된 단위전지들의 기계적인 지지체 기능을 구비하게 된다.
- <97> 이하에서는 본 발명에 의한 실시예에 의한 분리판(250,260)에 관해 더욱 상세히 설명한다.
- <98> 도 4는 본 발명의 실시예에 의한 연료전지 스택의 단위전지(200)에서 환원전극쪽 분리판(260)의 전면(400), 즉, 환원전극쪽 면을 도시한 도면이다.
- <99> 도 4에 도시된 바와 같이, 환원전극쪽 분리판(260)의 상부에는, 상기 수소공급구(271), 냉각수공급구(272), 및 공기공급구(273)에 각각 대응되는 수소공급용 매니폴드(471), 냉각수공급용 매니폴드(472), 및 공기공급용 매니폴드(473)가 분리판(260)을 관통하여 형성된다.

- <100> 또한, 환원전극쪽 분리판(260)의 하부에는, 상기 공기배출구(274), 냉각수배출구(275) 및 수소배출구(276)에 각각 대응되는 공기배출용 매니폴드(474), 냉각수배출용 매니폴드(475), 및 수소배출용 매니폴드(476)가 분리판(260)을 관통하여 형성된다.
- <101> 매니폴드(471~476)로부터 반응가스/냉각수가 누출되지 않도록, 상기 각 매니폴드(471~476) 둘레에는 실링재(sealant)가 도포되기 위한 매니폴드 실링홈(sealant groove)(481~486)이 각각 형성되어 있다.
- <102> 환원전극쪽 분리판(260)의 전면의 연료전지 반응영역(즉, 유체분배층(225)에 접하는 영역)에는, 막전극접합체(230)에 공기를 공급하기 위한 공기유로채널(410)가 리브(rib)(420)에 의해 분리되어 형성되어 있다. 이러한 공기유로채널(410)은 설정된 깊이의 홈(groove)으로 형성된다.
- <103> 도 4에서는, 본 발명의 실시예에 의한 분리판(260)에서 공기유로채널(410)이 사형(serpentine)구조로 형성된 것을 도시하였으나, 이는 본 발명의 기술적 사상이 적용될 수 있는 일예에 불과한 것으로, 본 발명의 보호범위가 여기에 한정된 것으로 해석되어서는 안된다.
- <104> 공기유로채널(410)의 시작측 종단에는 공기유로채널(410)에 공기를 공급하기 위한 공기공급홀(450)이 분리판(260)을 관통하여 형성되고, 공기유로채널(410)의 말단에는 공기유로채널(410)로부터 공기를 배출하기 위한 공기배출홀(460)이 분리판(260)을 관통하여 형성된다.
- <105> 공기공급용 매니폴드(473)에 공급된 공기는 분리판(260)의 후면에 형성된 공기공급유로(550)(도 5 참조)를 통해 공기공급홀(450)에 공급된다. 공기배출홀(460)에서 배출되는 공기는 분리판(260)의 후면에 형성된 공기배출유로(560)(도 5 참조)를 통해 공기배출용 매니폴드(474)로 배출된다.

- <106> 이러한 공기유로채널(410), 공기공급홀(450), 공기배출홀(460)이 형성된 반응영역 둘레에는, 반응영역으로부터 공기가 누출되지 않도록 실링재가 도포되기 위한 반응영역 실링홈(480)이 형성되어 있다.
- <107> 이러한 실링홈(480~486)은 상기 매니폴드 및 상기 유체분배층에 밀착하는 영역 각각을 폐곡선으로 감싸는(enclose) 형태로 형성된다.
- <108> 분리판(260) 상의 실링홈들(480~486) 사이의 여유공간에는 분리판(260)의 전후면의 유로채널이 얼라인되어 형성되기 위하여, 한 쌍 이상의 얼라인 홀이 분리판(260)을 관통하여 형성되어 있다.
- <109> 상기 한 쌍 이상의 얼라인 홀은, 크기가 다른 복수 쌍의 얼라인 홀(431과 432의 쌍, 및 433과 434의 쌍)로 형성된다. 이와 같이 얼라인 홀 쌍을 그 크기를 달리하여 구성함으로써 대구경 얼라인 홀(431,432)은 개략적인 얼라인을 가능하게 하고(즉, 손쉽게 얼라인될 수 있게 되고), 소구경 얼라인 홀(433,434)은 정밀한 얼라인을 가능하게 한다.
- <110> 일례로, 도 4에서는, 대구경 얼라인 홀(431,432) 쌍이 분리판의 상하에 각각 형성되고, 소구경 얼라인 홀(433,434)이 상기 대구경 얼라인 홀(431,433) 내측으로 형성되는 것으로 도시하였다.
- <111> 일례로, 도 4에서는, 상부의 얼라인 홀(431,433)은 수소공급용 매니폴드(471)의 실링홈(481)과 냉각수공급용 매니폴드(472)의 실링홈(482) 사이에 형성되고, 하부의 얼라인 홀(432,434)은 수소배출용 매니폴드(476)의 실링홈(486)과 냉각수배출용 매니폴드(475)의 실링홈(485) 사이에 형성되는 것으로 할 수 있다.

- <112> 이러한 얼라인 홀(431,432,433,434)을 이용하여 바이폴라 구조의 분리판(260)의 전후면(400,500) 상의 유로채널을 얼라인 형성하는 과정은 후술하는 본 발명의 실시예에 의한 분리판 제조방법에서 상세히 설명한다.
- <113> 도 5는 본 발명의 실시예에 의한 연료전지 스택의 단위전지(200)에서 환원전극쪽 분리판(260)의 후면(500), 즉, 환원전극 반대쪽 면을 도시한 도면이다.
- <114> 도 5에 도시된 바와 같이, 공기공급용 매니폴드(473)와 공기공급홀(450)은 공기공급유로(550)에 의해 연결되어 있고, 공기배출용 매니폴드(474)와 공기배출홀(460)은 공기배출유로(560)에 의해 연결되어 있다. 이러한 공기공급유로(550) 및 공기배출유로(560)는 홈(groove)의 형태로 분리판(260) 후면(500)에 형성되어 있다.
- <115> 또한, 수소공급용 매니폴드(471)에는 수소공급유로(555)가 형성되어 있으며, 수소배출용 매니폴드(476)에는 수소배출유로(565)가 형성되어 있다. 이러한 수소공급유로(555) 및 수소배출유로(565)는 홈(groove)의 형태로 분리판(260) 후면(500)에 형성되어 있다.
- <116> 이들 각 매니폴드(471,473,474,476) 둘레에는, 실링재가 도포되기 위한 실링홈(581,583,584,586)이 각 매니폴드 및 이에 연결된 유로를 감싸는 형태로 형성되어 있다.
- <117> 분리판 후면(500)의 중앙부위에는 냉각수공급용 매니폴드(472)로부터 공급된 냉각수가 순환하기 위한 냉각수유로채널(510)이 리브(520)에 의해 구분 형성되어 있다. 분리판 후면(500)의 이러한 냉각수유로채널(510)은, 분리판 전면(400)의 수소유로채널(410)과 얼라인되어 형성되어 있다.
- <118> 연료전지의 냉각수는 냉각수공급용 매니폴드(472)를 통해 냉각수유로채널(510)에 공급되어 분리판(260)의 후면을 순환한 후 냉각수배출용 매니폴드(475)를 통해 배출되게 된다.

- <119> 이러한 냉각수공급용 매니폴드(472), 냉각수유로채널(510), 및 냉각수배출용 매니폴드(475) 둘레에는, 냉각수가 외부로 누출되지 않도록 실링재가 도포되기 위한 냉각수용 실링홈(580)이 이들을 감싸는 형태로 형성되어 있다.
- <120> 도 6은 본 발명의 실시예에 의한 연료전지 스택의 단위전지(200)에서 산화전극쪽 분리판(250)의 후면(600), 즉, 산화전극쪽 면을 도시한 도면이다.
- <121> 산화전극쪽 분리판(250)의 후면(600)은, 환원전극쪽 분리판(260)의 전면(400)과 유사한 구조를 가진다.
- <122> 즉, 도 6에 도시된 바와 같이, 분리판(250)의 상부에는 수소공급용 매니폴드(671), 냉각수공급용 매니폴드(672), 및 공기공급용 매니폴드(673)가 분리판(250)을 관통하여 형성되고, 분리판(250)의 하부에는 공기배출용 매니폴드(674), 냉각수배출용 매니폴드(675), 및 수소배출용 매니폴드(676)가 분리판(250)을 관통하여 형성된다. 또한, 상기 각 매니폴드(671~676) 둘레에는 실링재(sealant)가 도포되기 위한 매니폴드 실링홈(sealant groove)(681~686)이 각각 형성되어 있다.
- <123> 다만, 산화전극쪽 분리판(250)의 후면의 연료전지 반응영역에는, 막전극접합체(230)에 수소를 공급하기 위한 수소유로채널(610)이 리브(rib)(620)에 의해 분리되어 형성되어 있다.
- <124> 수소유로채널(610)의 시작측 종단에는 수소유로채널(610)에 수소를 공급하기 위한 수소공급홀(650)이, 그리고 수소유로채널(610)의 말단에는 수소유로채널(610)로부터 잔여 수소를 배출하기 위한 수소배출홀(660)이 분리판(260)을 관통하여 형성된다.
- <125> 수소공급용 매니폴드(671)에 공급된 수소는 인접한 단위전지의 환원전극쪽 분리판(260)의 후면에 형성된 수소공급유로(555)(도 5 참조)를 통해 수소공급홀(650)에 공급된다. 수소배출홀

(660)에서 배출되는 수소는 인접한 단위전극의 환원전극쪽 분리판(260)의 후면에 형성된 수소 배출유로(565)(도 5 참조)를 통해 수소배출용 매니폴드(676)로 배출된다.

<126> 이러한 수소유로채널(610), 수소공급홀(650), 수소배출홀(660)이 형성된 반응영역 둘레에는, 반응영역으로부터 수소가 누출되지 않도록 실링재가 도포되기 위한 반응영역 실링홈(680)이 형성되어 있다.

<127> 산화전극쪽 분리판(250) 상에는, 환원전극쪽 분리판(260)의 얼라인 홀 (431,432,433,434)과 동일한 위치에 동일한 규격의 얼라인 홀(631,632,633,634)이 분리판(250)을 관통하여 형성되어 있다. 이러한 얼라인 홀(431,432,631,632)을 이용하여 단위전지(200)들의 적층도 용이하게 될 수 있다.

<128> 이상의 설명에서는, 본 발명의 실시예에 의한 분리판(250,260)의 외형적 구성과 반응가스/냉각수의 소통을 위주로 설명하였다.

<129> 이하에서는, 분리판(250,260)의 재질과 내부구조, 그리고 그 제조방법에 관해 상세히 설명한다.

<130> 도 7은 도 4의 VII-VII선에 의한 단면도이고, 도 8은 도 6의 VIII-VIII선에 의한 단면도이다.

<131> 본 발명의 실시예에서 분리판(250,260)의 재료로는, 흑연호일(graphite foil)(700,800)이 사용된다.

<132> 흑연호일의 생산과정에서는 통상적으로 압착과정이 수반되게 되고, 높은 압력으로 압착된 흑연호일은 층상의 내부구조를 가지게 된다. 즉, 본 발명의 실시예에서 분리판(250,260)의 재료는 층상구조의 흑연호일이라 할 수 있다. 본 발명의

실시예에 의한 분리판(250,260) 재질로 사용되는 흑연호일(700,800)의 층상구조에 관해서는, 도 7의 A부분의 확대도면 및 도 8의 B부분의 확대도면을 참조로 할 수 있다.

- <133> 흑연호일의 경우, 단위전지 적층방향으로의 열전도도(thermal conductivity)가 250W/mK 이상 이므로 연료전지 스택의 열배출 성능을 향상시킬 수 있으며, 연료전지 스택의 온도분포를 균일화하는데 기여할 수 있다.
- <134> 다만, 종래기술에 의한 흑연/복합탄소계 소재의 분리판에서는 반응가스의 누설방치 또는 흑연 재질의 용이한 성형(mold)을 위해 서모세팅(thermosetting) 또는 서모플라스틱(thermoplastic) 과 같은 수지(resin)를 함유하여 분리판을 제조하고 있다.
- <135> 그러나, 본 발명의 실시예에 의한 분리판(250,260)에서는 이와 같은 수지가 실질상 배제된 흑연호일을 사용한다. 층상구조의 흑연호일은 대량생산되고 있는 것으로서, 종래기술에 의한 수지함유가 불필요하게 되므로 대량생산이 더욱 용이하다. 따라서, 이러한 층상구조의 흑연호일을 이용하여 분리판을 제조하는 경우에는 분리판 제조원가절감에 기여할 수 있게 된다.
- <136> 뿐만 아니라, 수지의 내구온도가 100℃이하이므로 수지가 함유된 흑연재질의 종래기술에 의한 분리판은 100℃이상의 온도로 운전되는 연료전지에는 사용될 수 없다. 따라서, 수지가 배제된 흑연호일을 사용하는 경우에는 연료전지의 운전 가능한 온도의 폭을 넓힐 수 있고, 연료전지의 운전 중 100℃이상으로 과열되는 경우에도 내구성을 확보할 수 있게 된다.
- <137> 수지가 배제된 상태에서도 분리판(250,260) 상의 유로형성 등, 성형이 용이하고, 또한, 반응가스의 누설방지 및 발수 효과를 구비할 수 있으며, 그 내구성 또한 향상될 수 있다. 수지가 배제된 상태의 흑연호일을 사용하여 안정되고 고성능의 분리판을 제조하는 방법에 관해서는 후술한다.

- <138> 연료전지의 분리판은 연료전지 스택 체결시 균일한 압력을 유지하면서도 변형이 억제되어야 하며, 전기전도성이 확보되어야 한다.
- <139> 따라서, 본 발명의 실시예의 분리판(260,250) 재질로 사용되는 흑연호일은, 체적밀도(bulk density)가 1.5g/cm^3 이상인 것이 바람직하다. 실험결과, 흑연호일의 체적밀도가 그 미만인 경우에는 연료전지 스택 체결시 분리판의 변형이 심화되어 반응가스의 누설(leak) 또는 접촉저항의 증가가 발생할 소지가 있는 것으로 나타났다.
- <140> 또한, 체적밀도가 지나치게 높은 것은 흑연호일의 제조원가, 즉, 분리판의 생산비용을 증가시키게 되는 원인이 된다. 따라서, 본 발명의 실시예의 분리판(250,260)의 재질로 사용되는 흑연호일은 그 체적밀도가 2.0g/cm^3 이하인 것으로 할 수 있다.
- <141> 분리판의 두께가 지나치게 얇은 경우에는 분리판의 가스투과율(gas permeability)이 증가되어 연료전지 스택의 성능과 내구성에 악영향을 끼칠 수 있다. 이러한 점을 고려하여, 본 발명의 실시예에 의한 분리판(250,260)의 재질로 사용되는 흑연호일의 두께(D1,D2)는 0.5mm 이상인 것이 바람직하다.
- <142> 통상적인 유로채널의 최소깊이(depth)는 0.2mm 정도이다. 따라서, 흑연호일의 두께가 0.5mm 미만인 경우에는, 유로채널 상의 두께(d2)가 0.3mm 미만으로 형성되게 된다. 이 경우, 흑연호일(700,800)의 가스투과율이 지나치게 높아지는 것으로 확인되었다.
- <143> 따라서, 흑연호일을 소재로 하는 분리판의 두께를 0.5mm 이상으로 함으로써, 이러한 최소한의 두께를 확보하면서도 연료전지 스택의 내구성과 성능 확보를 기대할 수 있게 되는 것이다.

- <144> 그러나, 분리판의 두께가 지나치게 두꺼워지는 것은 성능 및 내구성에 큰 도움이 되지 않으면서 제조원가를 상승하게 된다. 실험결과, 본 발명의 실시예에 의한 분리판 재질로 사용되는 흑연호일의 두께는 3mm를 초과할 필요는 없는 것으로 나타났다.
- <145> 고분자 전해질 연료전지의 통상적인 운전온도가 100℃ 미만(약 80℃ 정도)인 점을 고려하면, 연료전지 운전시 반응 부산물인 열과 물의 원활하고 균일한 배출은 매우 중요하다.
- <146> 이를 위해 본 발명의 실시예에 의한 분리판(260,250)의 유로채널(410,610)의 내면에는, 발수층(hydrophobic layer)(710,810)이 그 표면에 함침(impregnation) 형성된다. 이와 같이 유로채널(410,610)의 표면에 형성된 발수층은 유체분배층(225)을 통해 전극에 반응가스를 효과적으로 공급하는 데에도 기여한다.
- <147> 이러한 발수층(710,810)은 도 7 및 도 8에 도시된 바와 같이, 리브(420,620)의 표면에는 형성되지 아니한다. 따라서 발수층(710,810)으로 인하여 분리판(260,250)과 유체분배층(225) 사이의 접촉저항이 증가되는 염려가 해소된다.
- <148> 종래기술에 의하면 통상적인 발수처리의 경우, 원재료 표면에 발수층을 코팅하게 된다. 이 경우, 발수층이 쉽게 뜯어지거나 벗겨지게 되는 경우가 있다.
- <149> 그러나, 본 발명의 실시예에 의한 발수층(710,810)은, 유로채널(410,610)의 내면을 수십 마이크로미터(μm) 정도로 거칠게 형성한 후, 거칠어진 표면에 발수층(710,810)을 함침하여 형성하고 있다. 따라서, 발수층(710,810)이 표면으로부터 함침되어 형성되므로, 발수층(710,810)의 유로채널(410,610) 내면과의 접촉강도가 향상되어 발수층(710,810)의 내구성이 향상되게 된다.

- <150> 이와 같이 유로채널 내로 함침 형성된 발수층(710,810)의 두께는 30 μm 내지 100 μm 범위에 포함되는 것이 바람직하다. 연료전지 스택의 체결압 하에서 반응가스와 냉각수가 흐르게 되는 환경을 고려하면, 발수층(710,810)의 발수 성능을 내구성 있게 유지하기 위해서는 발수층(710,810)의 두께가 30 μm 이상인 것이 바람직하다. 반대로, 발수층(710,810)의 두께가 100 μm 이상으로 두꺼운 경우에는, 발수층을 형성하기 위해 사용하는 발수액(hydrophobic solution)이 과다하게 상기 유로채널(410,610) 내로 함침되어, 발수 열처리(일예로, 330℃ 열처리)시 층상구조의 흑연호일에 기포 등에 의한 층상 분리 현상이 발생할 수 있는 것으로 나타났다.
- <151> 도 4 내지 도 6을 참조로 전술한 바와 같이, 매니폴드(471~476 및 671~676) 및 유체분배층 접촉영역 둘레에는 밀봉용 홈(sealant groove)(481~486 및 681~686, 480, 680)이 형성되어 있다.
- <152> 도 7 및 도 8에 도시된 바와 같이, 분리판(260,250)의 밀봉용 홈에는 실링부재(790,890)가 도포되어 분리판(260,250)에 일체화된다. 도 7 및 도 8에는 특정부위의 단면으로 실링부재(790,890)가 도포된 것을 도시하였으나, 이러한 실링부재(790,890)는 분리판(260,250)의 각 실링홈(480~486, 580~586, 680~686)에 도포된다. 상기 실링부재(790,890)로는 일예로, 실리콘계, 불소계, 혹은 올레핀계의 고무액이 사용될 수 있다.
- <153> 이와 같이 밀봉용 홈을 통해 실링부재가 분리판(260,250)에 도포되어 일체화되므로, 연료전지 스택의 조립공정이 단순화될 수 있다.
- <154> 이하에서는, 전술한 바와 같이 층상구조의 흑연호일을 재료로 하여 그 유로채널 내면에 발수층이 함침 형성된 분리판을 제조하는 방법에 관하여 본 발명의 실시예를 상세히 설명한다.
- <155> 도 9는 본 발명의 실시예에 의한 연료전지용 분리판 제조방법을 도시한 흐름도이다.

- <156> 도 9에 도시된 바와 같이, 본 발명의 실시예에 의한 연료전지용 분리판 제조방법은, 먼저, 설정된 두께 및 체적밀도의 흑연호일을 준비한다(S910).
- <157> 그리고, 준비된 흑연호일에, 매니폴드, 실링용 홈 및 유로 형상에 상응하는 마스크 패턴(mask pattern)을 형성한다(S920).
- <158> 그런 다음, 마스크 패턴된 흑연호일을 선택적으로 건식식각을 수행하여 매니폴드, 실링용 홈 및 유로채널을 형성한다(S930).
- <159> 그리고, 유로채널 표면에 발수층을 함침되게 형성한다(S940).
- <160> 그런 후, 발수층이 함침 형성된 흑연호일에서 상기 마스크 패턴을 제거한 후, 세척 및 열처리 과정을 거쳐 분리판을 완성하게 된다(S950).
- <161> 이와 같은 과정에 의하면, 모노폴라 구조의 분리판이 완성되게 된다. 바이폴라 구조의 분리판을 제조하기 위해서는, 준비된 흑연호일의 일측면에 상기 S920 및 S930 단계를 거쳐 유로채널 등(즉, 상기 매니폴드, 실링용 홈 및 유로채널)을 형성한 후, 흑연호일의 다른 측면에 마찬가지로 상기 S920 및 S930 단계를 거쳐 유로채널 등을 형성한다.
- <162> 그런 후, 양측면에 유로채널 등이 그 양측면에 형성된 흑연호일을 상기 S940 및 S950 단계를 거쳐 바이폴라 구조의 분리판을 완성하게 된다.
- <163> 따라서, 바이폴라 구조의 분리판 제조과정은 모노폴라 구조의 분리판 제조과정에 관한 설명으로부터 용이하게 이해할 수 있을 것이다.
- <164> 이하에서는, 일예로 모노폴라 구조의 분리판(250)을 제조하는 방법에 관해, 전술한 각 단계(S910~S950)를 더욱 상세히 설명한다.

- <165> 먼저, 흑연호일 준비과정(S910)에서는, 일예로, 두께 1.0mm, 평균비중 1.78g/cm^3 , 크기 10cm x 15cm 의 흑연호일을 준비한다. 이 때, 준비된 흑연호일을 건조기에서 100°C , 5분 동안 건조하여 수분을 제거한다. 준비된 흑연호일에 얼라인 홀(631,632,633,634)을 형성한다. 이 때, 준비된 흑연호일은 유로채널 등이 형성되기 전이므로, 얼라인 홀(631,632,633,634)의 직경, 그리고 그 사이 거리만 설정된 제원에 따라 형성하면 된다.
- <166> 상기 마스크 패턴 형성단계(S920)는, 여러가지 방식으로 구체화될 수 있다. 일예로는, 고무(rubber) 또는 스테인레스 소재로서 유로채널 등의 형상이 새겨진 마스크를 흑연호일에 부착하는 것으로 할 수 있다.
- <167> 다른 예로는, 건식필름(dry film)을 이용하는 것으로 할 수 있다.
- <168> 건식필름(일예로 BF410)을 이용하는 경우에, 먼저, 래미네이터(laminator) 장치를 사용하여 두께가 $100\mu\text{m}$ 인 건식필름(일예로 BF410)을 코팅한다. 래미네이터 공정 과정에서 상부 롤러 온도는 70°C 정도, 하부롤러 온도는 65°C 정도, 그리고 롤링 속도는 60mm/sec 정도로 하는 것이 바람직하다.
- <169> 그리고, 유로채널 등이 패턴된 필름 마스크(film mask)를 흑연호일에 밀착하여, 노광기에서 20mW/cm^2 정도의 에너지 밀도로 약 18~23초 동안 노광한다.
- <170> 건식필름의 경우 현상액에 디핑(dipping)하는 경우 용기될 소지가 있다. 따라서, 건식필름이 코팅된 흑연호일을 현상하기 위해, 분무형 현상기에서 현상액(일예로, 1~2% Na_2CO_3 용액) 노즐을 이동하면서 분무하여 현상하는 것이 바람직하다.

- <171> 분무형 현상기의 공정 조건은, 현상액 온도 25℃ 정도, 분무 압력 2.7Kg/cm² 정도, 노즐 이동 속도는 80mm/sec 정도로 하는 것이 바람직하다. 이와 같이 현상한 후에는, 오븐에서 100℃, 5분 동안 베이킹(bake)를 실시하는 것이 바람직하다.
- <172> 이러한 마스크 패턴 형성단계(S920)에서는 마스크를 흑연호일에 부착하는 과정이 포함되어 있다. 이 때, 얼라인 홀(631,632,633,634)과 얼라인 봉이 사용된다. 이와 같이 얼라인 홀(631,632,633,634)를 이용하여 흑연호일에 마스크를 부착하는 과정에 관해 더욱 상세히 설명한다.
- <173> 도 10에 도시된 바와 같이, 노광기(1000)위의 작업평판(1100)에는 대구경의 얼라인 봉(1021,1022) 쌍과 소구경의 얼라인 봉(1023,1024) 쌍이 돌출 형성되어 있다. 상기 작업평판(1100)은 노광기(1000)의 광원(1005)에서 생성된 현상광이 통과할 수 있는 투명판으로 형성된다.
- <174> 준비된 마스크(1010)에는 상기 얼라인 봉(1021,1022,1023,1024)에 대응되는 설정된 위치에 얼라인 홀(1011,1012,1013,1014)이 형성되어 있다. 그리고 상기 흑연호일 준비단계(S910)에서는 상기 얼라인 봉(1021,1022,1023,1024)에 대응되는 위치에 흑연호일의 얼라인 홀(631,632,633,634)이 형성된다.
- <175> 통상적으로 마스크(1010)의 두께는 0.2mm 미만이므로, 상기 작업평판(1100)으로부터 얼라인 봉(1021,1022,1023,1024)이 돌출되는 높이(h)는 0.2mm 정도로 적다. 다만, 대구경의 얼라인 봉(1021,1022)이 소구경의 얼라인 봉(1023,1024)보다 약간 더 돌출되도록 함으로써, 분리판의 배치시 대구경의 얼라인 봉(1021,1022)을 이용하여 개략적인 위치를 손쉽게 잡은 후, 소구경의 얼라인 봉(1023,1024)을 이용하여 정밀하게 얼라인 위치를 잡을 수 있다.

- <176> 이와 같이 돌출된 얼라인 봉(1021,1022,1023,1024)이 얼라인 홀(1011,1012,1013,1014)이 삽입 되도록 마스크(1010)를 작업평판(1100) 상에 배치한다. 이 때, 얼라인 봉(1021,1022,1023,1024)의 돌출 높이(h)는 마스크(1010)의 두께보다 크므로 얼라인 봉(1021,1022,1023,1024)는 마스크(1010)를 통과하여 돌출되게 된다.
- <177> 따라서, 준비된 흑연호일을 얼라인 홀(631,632,633,634)이 얼라인 봉(1021,1022,1023,1024)에 끼워지도록 배치하는 것만으로도 분리판의 전후면은 정밀하게 얼라인될 수 있다. 이와 같은 얼라인 과정에 의해 흑연호일에 마스크를 부착함으로써, 분리판의 전후면은 정밀하게 얼라인되게 된다.
- <178> 상기 유로채널 형성단계(S930)에서는, 마스크 패턴(mask pattern) 공정을 거친 흑연호일을 일 예로 샌드블러스터(sand bluster)장치를 사용하여 유로채널의 깊이(depth)가 약 $500\mu\text{m}$ 정도가 되도록 건식식각(etch)한다.
- <179> 이러한 샌드블러스터 공정 조건에서, 기판 이동 속도는 약 40mm/분 정도, 노즐 이동 속도는 약 20m/분 정도, 노즐 분출압력은 약 $3.0\text{kg}/\text{cm}^2$, 그리고 기판과 노즐 사이의 거리는 약 60mm 정도인 것이 바람직하다. 유로채널 바닥면에 수십 마이크로미터의 거칠기(surface roughness)가 형성될 수 있도록, 연마제는 일 예로 SiC를 사용할 수 있다.
- <180> 이와 같은 샌드블러스터 공정 대신에 혹은 이와 병용하여, 연마제를 이용한 식각방법인 초음파식각(Ultrasonic etching) 과정이 수행될 수 있다.
- <181> 상기 발수층 함침 형성과정(S950)에서는, 유로채널이 형성되고 마스크 패턴이 부착된 흑연호일을, 발수액(일 예로, 20% PTFE(Polytetrafluorethelyene) 용액)에 2초 내지 4초 동안 디핑

(dipping)하거나 스프레이코팅(spray coating) 처리한 후, 50℃ 내지 90℃ 범위에서 건조한다.

- <182> 상기 분리판 완성단계(S950)에서는, 흑연호일에 부착된 건식필름을 제거하기 위해 초음파세척기를 사용하여 상기 마스크 패턴을 아세톤 용액에서 제거한 후, 세정 그리고 열처리하여 분리판을 완성한다. 이러한 세정 및 열처리 과정은 당업자에게 자명하다. 그리고 고무 또는 스테인레스 소재의 마스크가 사용된 경우에는 이를 분리함으로써 제거할 수 있다.
- <183> 이상 본 발명의 실시예에 관한 설명에서는, 분리판이 균질한(uniform) 구조의 흑연호일을 사용하는 것을 설명하였다. 그러나, 본 발명의 보호범위가 반드시 이에 한정된 것으로 해석되어서는 안된다. 분리판으로 사용되는 흑연호일 내부에 스테인레스 층을 포함할 수 있는 등, 실시예의 변경이 가능하다.
- <184> 이하에서는, 이와 같이 분리판으로 사용되는 흑연호일이 그 내부에 스테인레스 층을 포함하는 것에 관해, 본 발명의 제2실시예를 도 11을 참조로 설명하기로 한다.
- <185> 도 11은 도 6의 본 발명의 제2실시예에 의한 XI-XI선에 따른 단면도이다.
- <186> 도 11에 도시된 바와 같이, 본 발명의 제2실시예에 의한 분리판(1150)으로 사용되는 층상구조의 흑연호일(1140)은, 그 내부에 스테인레스 층(1160)을 포함한다.
- <187> 이와 같이 내부에 스테인레스 층(1160)을 포함하는 흑연호일(1140)은, 스테인레스 층(1160)을 중심으로 하여 그 전후면에 설정된 두께의 흑연층을 압착함으로써 쉽게 생산될 수 있다.
- <188> 상기 스테인레스 층(1160)은, 일예로 SUS304 또는 SUS316을 사용하는 것으로 할 수 있으며, 그 두께(t)는 0.1mm 내지 0.3mm 인 것이 바람직하다. 이러한 스테인레스 층(1160)의 전후면에

형성되는 흑연층의 두께(d3)는, 유로(610)의 깊이를 고려하여 0.2mm 이상인 것이 바람직하고, 생산원가를 고려하여 3mm 이하인 것이 바람직하다.

- <189> 즉, 이러한 본 발명의 제2실시예에 의한 분리판(1150)은, 일예로 0.1mm 두께의 스테인레스 층(1160)을 중심으로 그 전후면에 각각 0.2mm 두께의 흑연층이 형성된 흑연호일(1140)(따라서 그 전체 두께(D3)는 0.5mm가 된다)을 이용하여, 그 일측면(일예로, 도 11의 상면)을 건식식각하여 유로(610)를 형성할 수 있게 되는 것이다.
- <190> 또한, 이와 같이 내부에 스테인레스 층(1160)이 형성된 흑연호일(1140)을 이용하여 분리판(1150)을 생산하는 과정은, 도 10을 참조로 전술한 본 발명의 제1실시예에 관한 분리판(250,260)을 생산하는 과정과 동일하다.
- <191> 다만, 유로(610) 형성을 위한 건식식각 과정에서, 스테인레스 층(1160) 일측면은 스테인레스 층(1160)이 노출되도록 그 흑연층이 식각된다. 그런데, 스테인레스 층(1160)은 그 전후면에 형성된 흑연층에 비해 건식식각(예를 들면, 전술한 샌드블러스터링 식각) 과정에서 식각률이 현저히 낮다. 따라서, 이러한 스테인레스 층(1160)은 식각과정에서 식각장벽(etch stop)의 역할을 할 수 있게 되는 것이다.
- <192> 이러한 특징에 의하면, 분리판의 생산과정이 더욱 편리해지는 것이며, 또한, 보다 낮은 정밀도의 생산장비를 이용하여도 고성능 고정밀의 분리판을 용이하게 생산할 수 있게 되는 것이다.
- <193> 비록 스테인레스 층(1160)의 강도는 흑연층에 비해 높으나, 식각과정에서 사용되는 연마제에 의해, 제1실시예에 관해 전술한 정도의 거칠기(일예로, 수십마이크로미터)는 그 표면에 용이하게 형성될 수 있다.

- <194> 그리고, 발수층 형성과정(도 9의 S940단계 참조)에서는, 스테인레스 층(1160)이 유로(610) 상에 노출된 상태에서 발수층(810)을 형성한다. 따라서, 스테인레스 층(1160)이 유로(610) 상에 노출된 상태에서 발수층(810)을 형성하게 되므로, 완성된 분리판(1150)의 경우 상기 발수층을 개재하여 유로 상에 노출되는 상태가 되게 된다.
- <195> 이상으로 본 발명에 관한 바람직한 실시예를 설명하였으나, 본 발명은 상기 실시예에 한정되지 아니하며, 본 발명의 실시예로부터 당해 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자에 의한 용이하게 변경되어 균등하다고 인정되는 범위의 모든 변경을 포함한다.
- <196> 일예로, 전술한 설명에서는 고분자전해질형 연료전지(Polymer Electrolyte Fuel Cell)을 대상으로 하여 본 발명을 설명하였으나, 본 발명의 보호범위가 이에 한정된 것으로 해석되어서는 안된다. 오히려, 그 정상작동온도가 흑연호일의 내구온도 범위(일예로 250도 이하)에 포함되는 임의의 방식의 연료전지에도 본 발명의 기술적 사상은 적용 가능하다. 일예로, 직접메탄올 연료전지(DMFC, Direct Methanol Fuel Cell)에도 본 발명의 기술적 사상은 적용 가능하다.
- <197> 따라서, 전술한 설명에서, 그리고 첨부된 청구항에서 고분자전해질형 연료전지에 해당하는 용어는 반드시 이에 한정되는 구성만을 의미하는 것으로 해석되어서는 안된다.
- <198> 일예로, 연료가스의 용어는, 가스형태의 수소뿐만 아니라, 액상으로 공급되는 메탄올 연료를 포함하는 포괄적인 의미로 이해되어야 한다. 또한, 막전극접합체의 용어는 고분자전해질 이외의 형태의 연료전지에 관하여는 이에 대응되는 구성을 지칭하는 것으로 이해되어야 한다.

【발명의 효과】

- <199> 전술한 바와 같이 본 발명의 실시예에 의하면, 연료전지용 분리판에 있어서, 층상구조의 흑연 호일(graphite foil)을 그 소재로 사용하고, 분리판에 형성된 유로채널의 내벽에는 발수층을 함침 형성하게 된다.
- <200> 따라서, 환원전극(cathode)에서 발생하는 물이 효율적으로 배출되게 되므로, 반응가스가 촉매 층으로 확산되는 것을 촉진시키는 등, 연료전지의 성능을 향상할 수 있다. 이는, 연료전지 스택의 단위체적당 출력밀도를 향상할 수 있게 되는 것이다.
- <201> 또한, 건식식각을 통해 형성된 분리판의 유로채널 내벽에 발수층이 함침 형성되게 되므로, 발수층의 내구성이 향상되고, 따라서, 연료전지의 내구성 및 신뢰성을 향상할 수 있게 된다.
- <202> 또한, 흑연호일 내부에는 서모세팅(thermosetting) 또는 서모플라스틱(thermoplastic)과 같은 수지(resin)이 실질상 배제되고, 막전극접합체에 접촉되는 분리판 표면은 마스크 패턴에 의해 발수층 형성이 방지되므로, 셀간의 접촉저항을 줄이기 위해 필요한 별도의 공정을 해소할 수 있게 된다.
- <203> 또한, 이러한 흑연호일은 열전도도(heat conductivity)가 높아 연료전지 스택에서의 냉각효과를 향상함과 아울러 연료전지 스택의 온도분포를 균일하게 할 수 있다.
- <204> 또한, 분리판의 소재로 사용되는 층상구조의 흑연호일은 대량생산이 가능하므로, 분리판 생산비용 즉, 연료전지 생산비용을 절감할 수 있다.
- <205> 또한, 그 제조과정이 단순화되고 대량생산에 적합하게 구현될 수 있으므로, 분리판의 생산비용 및 연료전지의 생산비용을 절감할 수 있다.

【특허청구범위】**【청구항 1】**

연료전지의 막전극접합체(MEA)의 산화전극 또는 환원전극에 유체분배층을 개재하여 밀착되고, 상기 유체분배층과의 사이에서 유체의 통로가 되는 유로채널이 형성된 연료전지용 분리판으로서,

상기 분리판은 층상구조의 흑연호일을 포함하며,

상기 유로채널의 내면에는, 발수층(hydrophobic layer)이 그 표면으로부터 함침(impregnation)형성된 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리판.

【청구항 2】

제2항에서,

상기 층상구조의 흑연호일은, 그 내부에 스테인레스 층을 포함하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리판.

【청구항 3】

제2항에서,

상기 스테인레스 층은 상기 발수층을 개재하여 외부에 노출되는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리판.

【청구항 4】

제1항에서,

상기 흑연호일은, 서모세팅(thermosetting) 또는 서모플라스틱(thermoplastic)의 수지(resin)가 실질상 배제된 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리판.

【청구항 5】

제1항에서,

상기 흑연호일은, 그 체적밀도가 1.5g/cm^3 내지 2.0g/cm^3 의 범위에 포함되는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리판.

【청구항 6】

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에서,

상기 흑연호일은, 그 두께가 0.5mm 내지 3mm 의 범위에 포함되는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리판.

【청구항 7】

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에서,

상기 발수층은, 그 두께가 $30\mu\text{m}$ 내지 $100\mu\text{m}$ 의 범위에 포함되는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리판.

【청구항 8】

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에서,

상기 분리판에는 하나 이상의 매니폴드가 형성되고,

상기 하나 이상의 매니폴드 및 상기 유체분배층에 밀착하는 영역 각각의 둘레에는 실링부재가 상기 분리판에 일체화되는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리판.

【청구항 9】

제8항에서,

상기 실링부재는, 상기 하나 이상의 매니폴드 및 상기 유체분배층에 밀착하는 영역 각각을 폐곡선으로 감싸는(enclose) 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리판.

【청구항 10】

연료전지의 막전극접합체(MEA)의 산화전극 또는 환원전극에 유체분배층을 개재하여 밀착되고, 상기 유체분배층과의 사이에서 유체의 통로가 되는 유로채널이 형성된 연료전지용 분리판을 제조하는 방법으로서,

설정된 규격의 흑연호일을 준비하는 단계;

상기 흑연호일에, 상기 유로채널에 대응하는 마스크 패턴(mask pattern)을 형성하는 단계;

상기 마스크 패턴이 형성된 흑연호일을 식각함으로써 상기 흑연호일에 유로채널을 형성하는 단계;

상기 유로채널의 내면에, 발수층(hydrophobic layer)을 함침 형성하는 단계; 및

상기 흑연호일로부터 상기 마스크 패턴을 제거하는 단계;를 포함하는 것을 특징으로 하는 연료전지 제조방법.

【청구항 11】

제10항에서,

상기 마스크 패턴(mask pattern)을 형성하는 단계는,

상기 흑연호일을 건식 필름(DFR; Dry Film Resistor)으로 코팅하는 단계;

상기 코팅된 흑연호일을 노광하는 단계; 및

분무형 현상기의 분무노즐을 이동하면서 상기 판의 건식 필름을 현상하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 연료전지 제조방법.

【청구항 12】

제10항에서,

상기 마스크 패턴(mask pattern)을 형성하는 단계는,

고무(rubber) 또는 스테인레스 소재로서, 상기 유로채널에 대응되는 패턴이 새겨진 마스크를 상기 흑연호일에 부착하여 형성하는 것을 특징으로 하는 연료전지 제조방법.

【청구항 13】

제10항에서,

상기 흑연호일에 유로채널을 형성하는 단계는,

샌드블라스터(sand blaster) 과정 및 초음파식각(ultrasonic etching)과정 중 하나 이상의 과정을 포함하는 것을 특징으로 하는 연료전지 제조방법.

【청구항 14】

제10항 내지 제13항 중 어느 한 항에서,

상기 발수층(hydrophobic layer)을 함침 형성하는 단계는,

상기 마스크 패턴이 부착되고 상기 유로채널이 형성된 상태에서 상기 흑연호일 상에 발수층을 형성하는 단계; 및

상기 발수층이 형성된 흑연호일을 50℃ 내지 90℃의 온도범위에서 건조시키는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 연료전지 제조방법.

【청구항 15】

제14항에서,

상기 발수층을 형성하는 단계는,

상기 흑연호일 표면에 발수액을 스프레이코팅(spray coating)하거나, 상기 발수액에 흑연호일을 디핑(dipping)하는 것을 특징으로 하는 연료전지 제조방법.

【청구항 16】

제10항에서,

상기 유로채널은 상기 분리판의 전면 및 후면에 형성되고,

상기 마스크 패턴은 전면 마스크 패턴 및 후면 마스크 패턴을 포함하되,

상기 전면 및 후면 마스크 패턴 각각에는 한 쌍 이상의 얼라인 홀이 형성되고,

상기 흑연호일에는 상기 마스크 패턴의 얼라인 홀에 대응되는 하나 이상의 얼라인 홀이 형성되어,

상기 마스크 패턴의 얼라인 홀 및 상기 흑연호일의 얼라인 홀은 이에 대응되는 한 쌍 이상의 얼라인 봉을 이용하여 얼라인되는 것을 특징으로 하는 연료전지 제조방법.

【청구항 17】

제16항에서,

상기 한 쌍 이상의 얼라인 홀, 및 한 쌍 이상의 얼라인 봉은, 크기가 다른 복수 쌍의 얼라인 홀 및 얼라인 봉을 각각 포함하는 것을 특징으로 하는 연료전지 제조방법.

【청구항 18】

적어도 하나 이상의 단위전지를 구비하는 연료전지 스택(stack)으로서,

상기 단위전지는,

고분자 전해질막과 그 양쪽면에 각각 형성되는 산화전극과 환원전극을 포함하는 막전극접합체(MEA);

상기 막전극접합체 양쪽면에서 상기 산화전극 및 환원전극에 각각 인접하도록 배치되는 한 쌍의 유체분배층; 및

상기 각각의 유체분배층의 바깥쪽면에 밀착 결합되며, 상기 유체분배층을 대하는 표면에 유로 채널이 형성되어 반응영역을 이루고, 이 반응영역의 주변부에 매니폴드(manifold) 영역이 형성되는 한 쌍의 분리판을 포함하되,

상기 한 쌍의 분리판 중 하나 이상의 분리판은 층상구조의 흑연호일을 포함하며,

상기 하나 이상의 분리판의 유로채널의 내면에는 발수층(hydrophobic layer)이 그 표면으로부터 함침되어 형성되는 것을 특징으로 하는 연료전지 스택.

【청구항 19】

제18항에서,

상기 층상구조의 흑연호일은, 그 내부에 스테인레스 층을 포함하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리판.

【청구항 20】

제19항에서,

상기 스테인레스 층은 상기 발수층을 개재하여 외부에 노출되는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리판.

【청구항 21】

제18항에서,

상기 흑연호일은, 서모세팅(thermosetting) 또는 서모플라스틱 (thermoplastic)의 수지(resin)가 실질상 배제된 것을 특징으로 하는 연료전지 스택.

【청구항 22】

제18항에서,

상기 흑연호일은, 그 체적밀도가 1.5g/cm^3 내지 2.0g/cm^3 의 범위에 포함되는 것을 특징으로 하는 연료전지 스택.

【청구항 23】

제18항 내지 제22항 중 어느 한 항에서,

상기 흑연호일은, 그 두께가 0.5mm 내지 3mm 의 범위에 포함되는 것을 특징으로 하는 연료전지 스택.

【청구항 24】

제18항 내지 제22항 중 어느 한 항에서,

상기 발수층은, 그 두께가 $30\mu\text{m}$ 내지 $100\mu\text{m}$ 의 범위에 포함되는 것을 특징으로 하는 연료전지 스택.

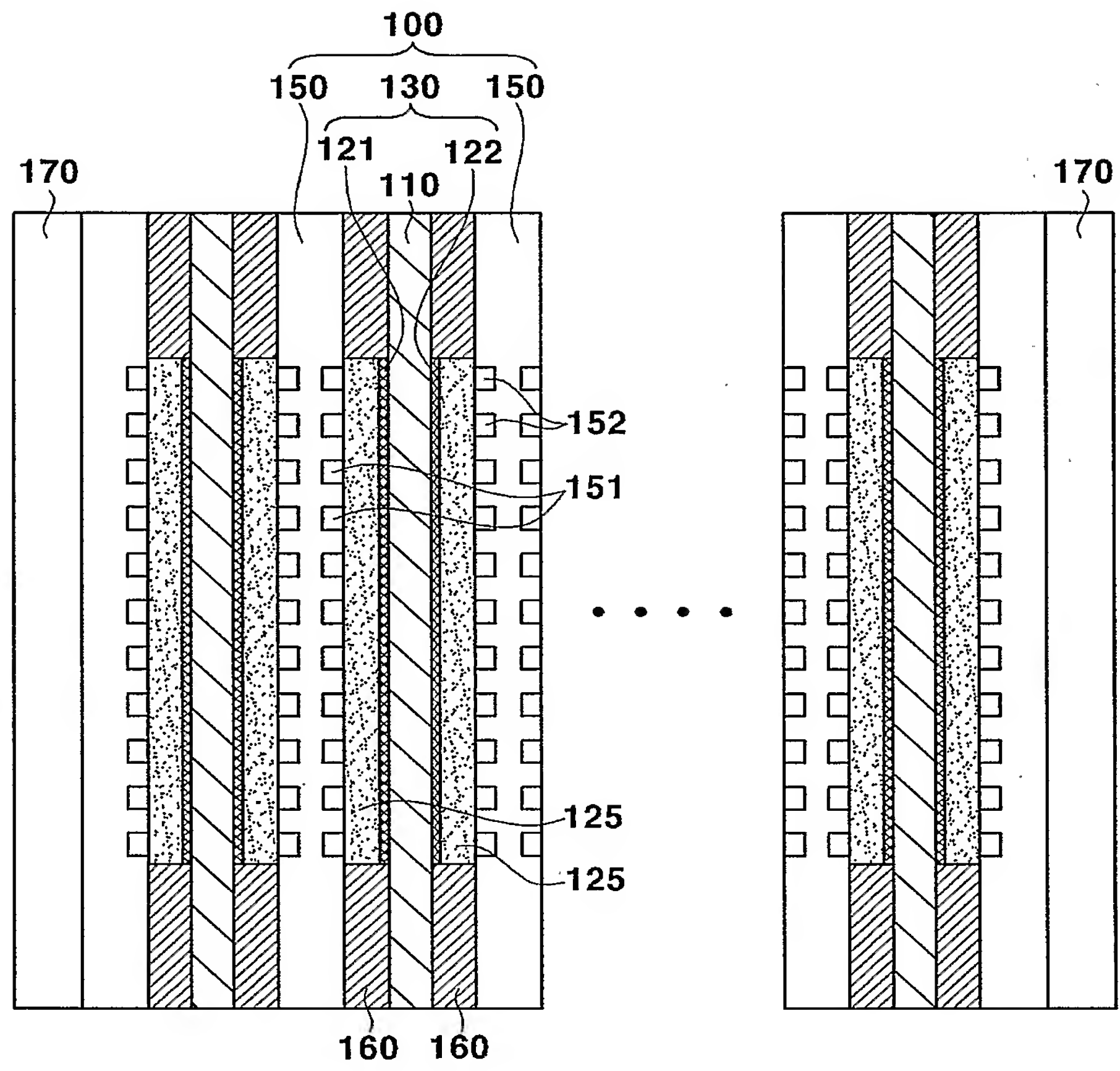
【청구항 25】

제18항 내지 제22항 중 어느 한 항에서,

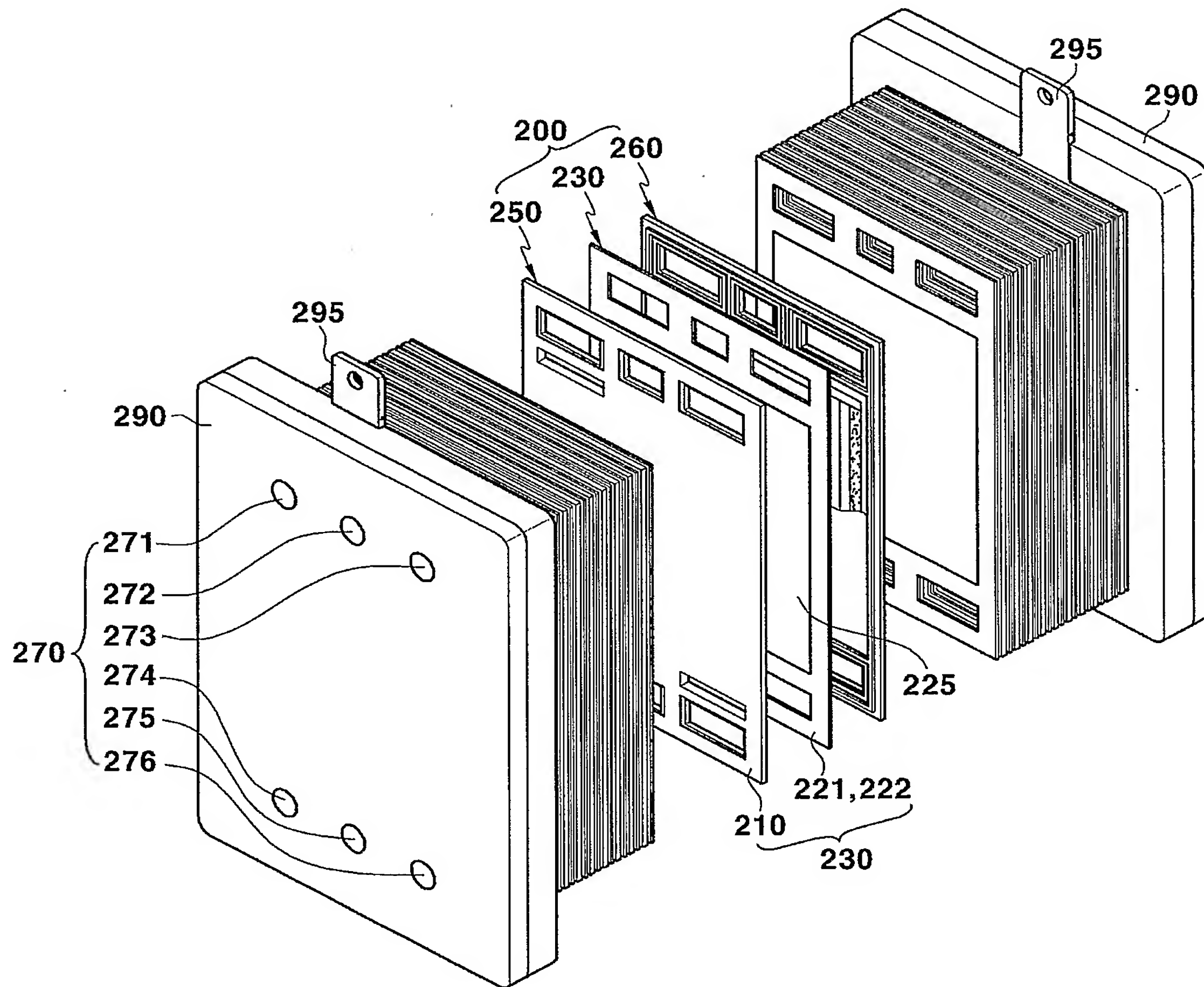
상기 매니폴드 외곽과 상기 반응영역 외곽을 따라 실링부재가 상기 분리판과 일체화되는 것을 특징으로 하는 연료전지 스택.

【도면】

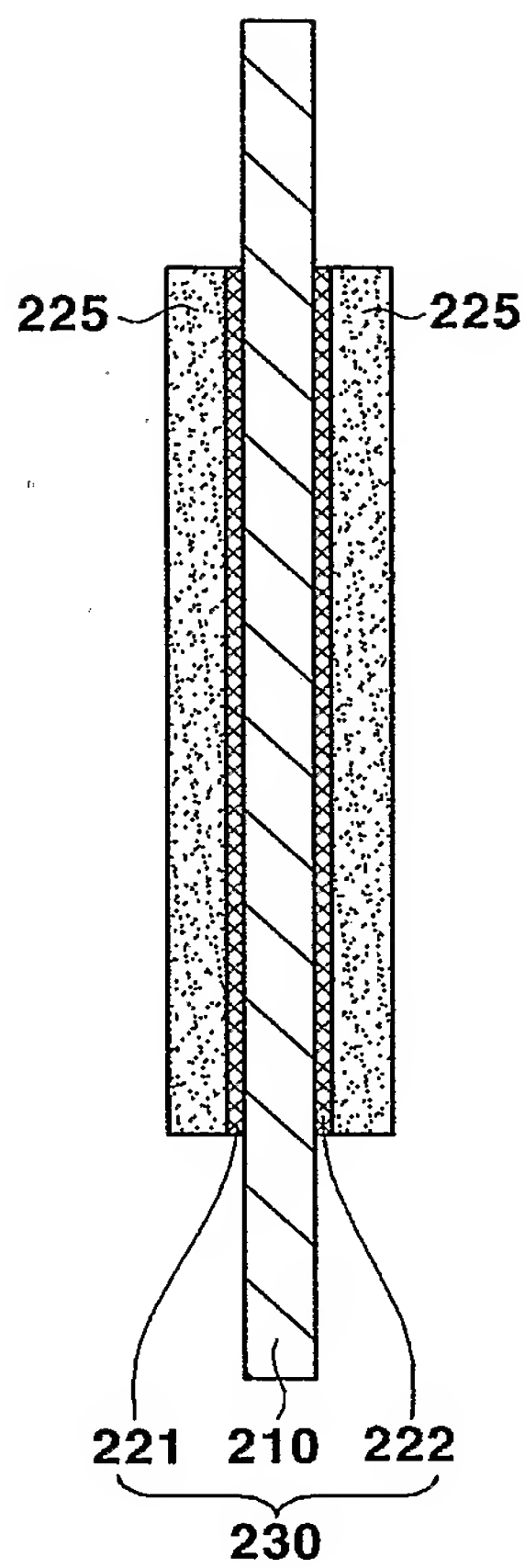
【도 1】



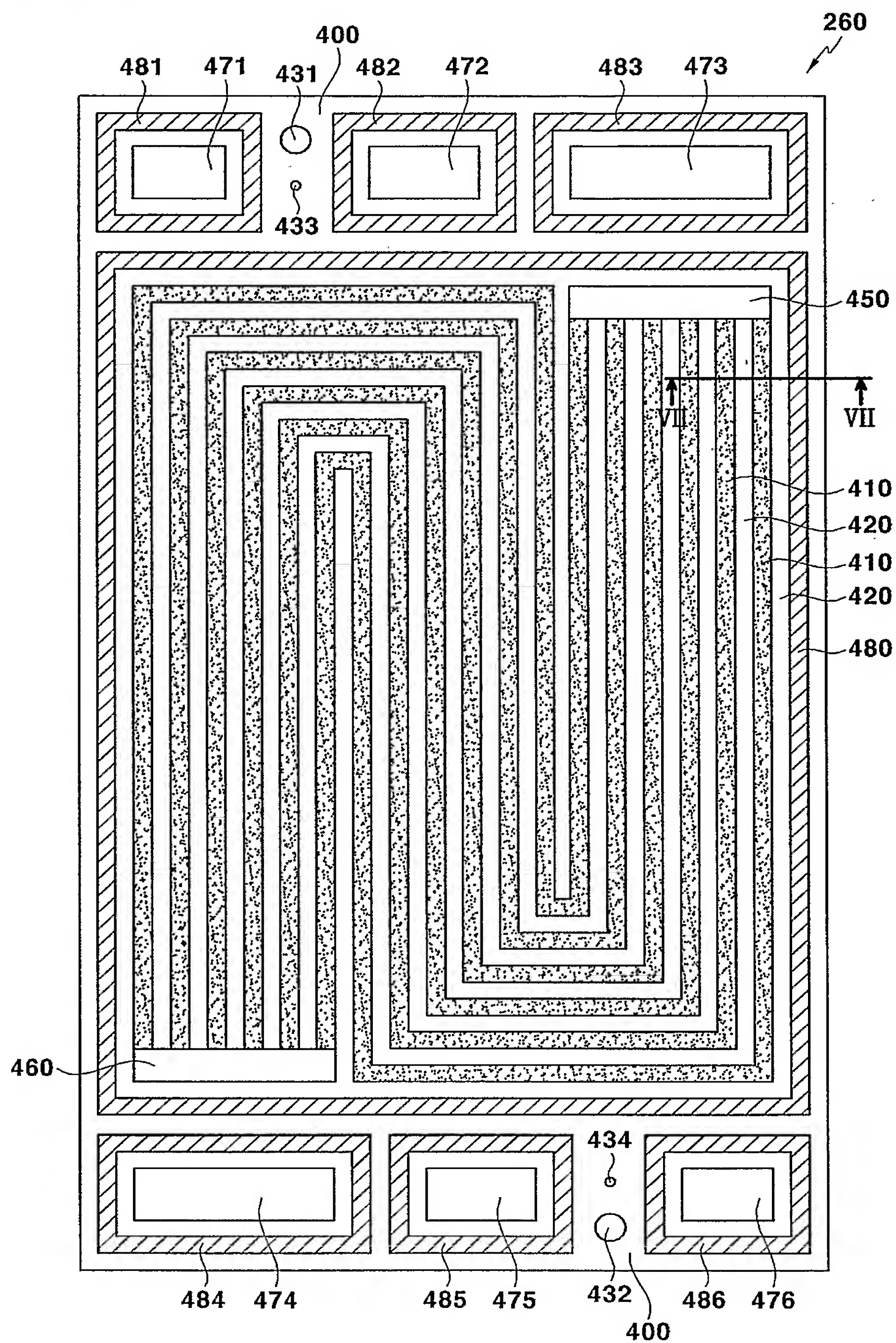
【도 2】



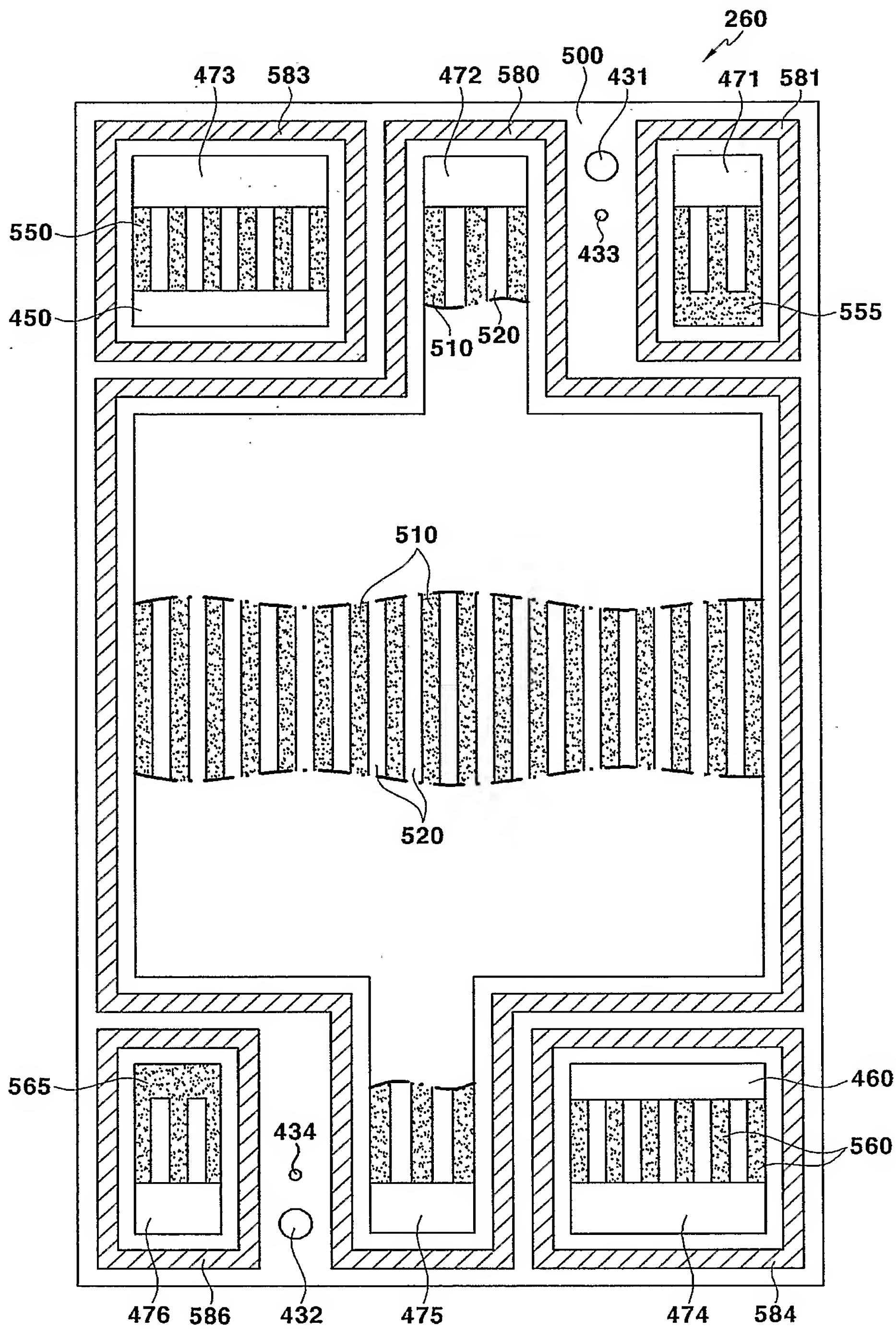
【도 3】



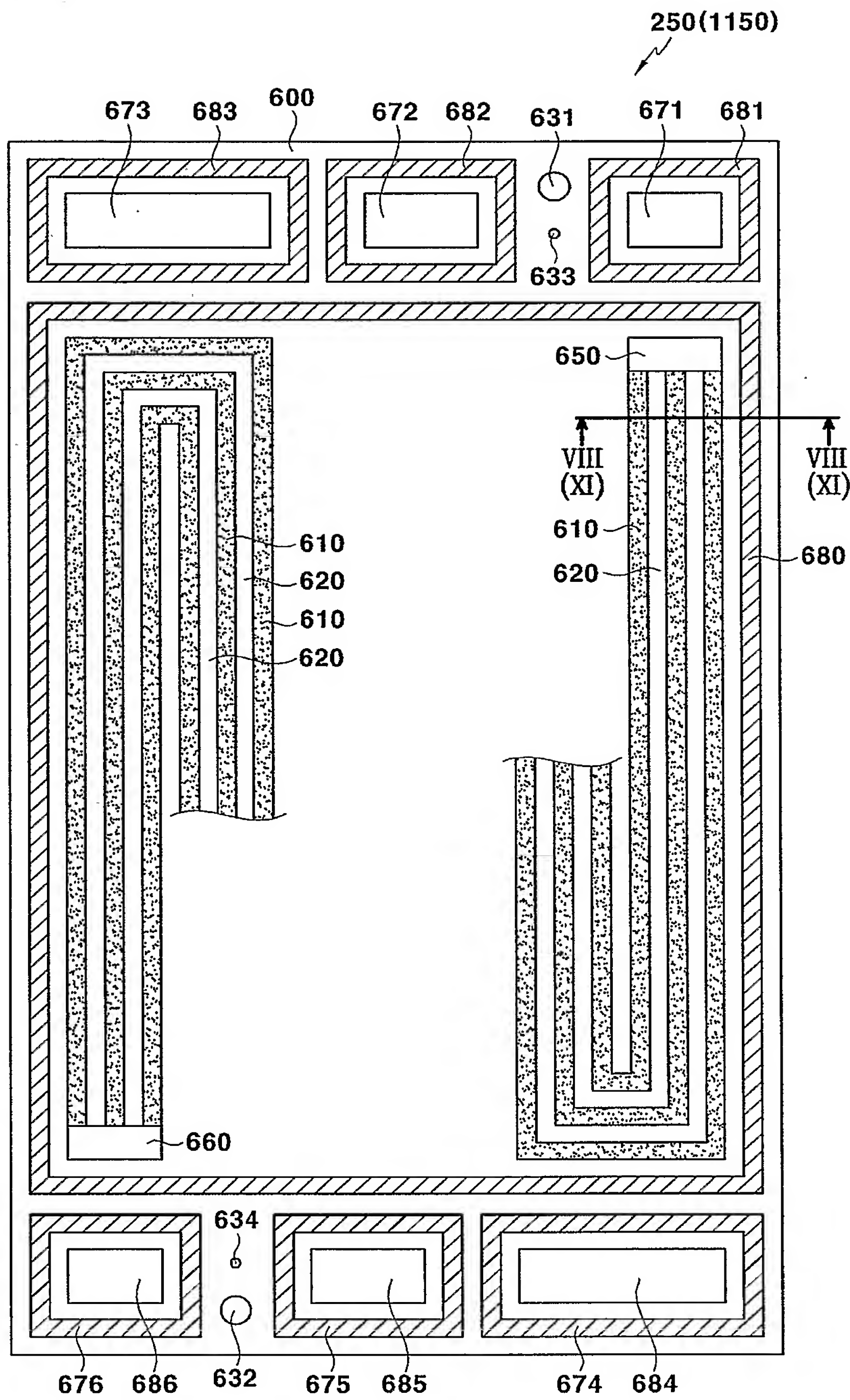
【도 4】



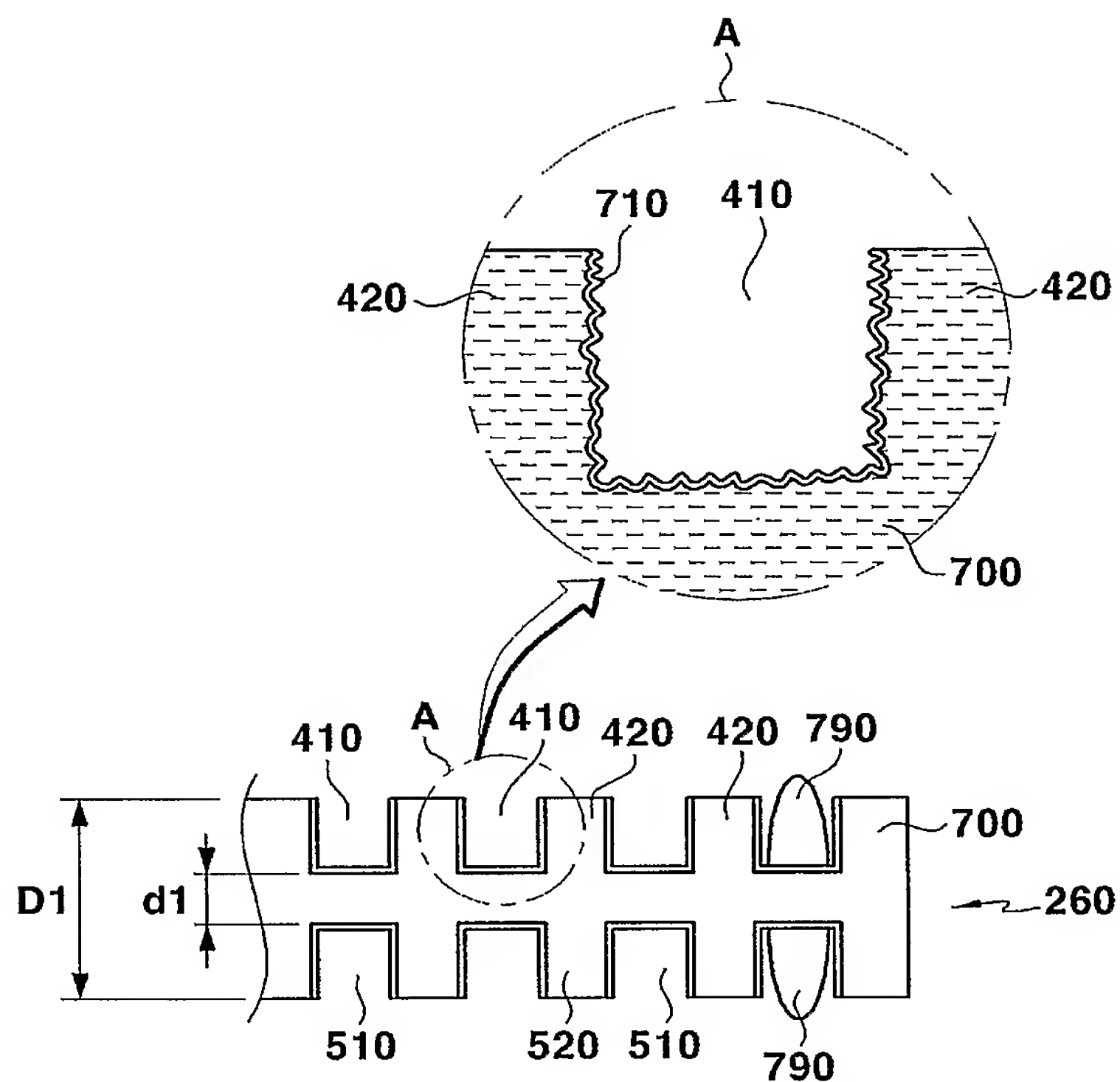
【도 5】



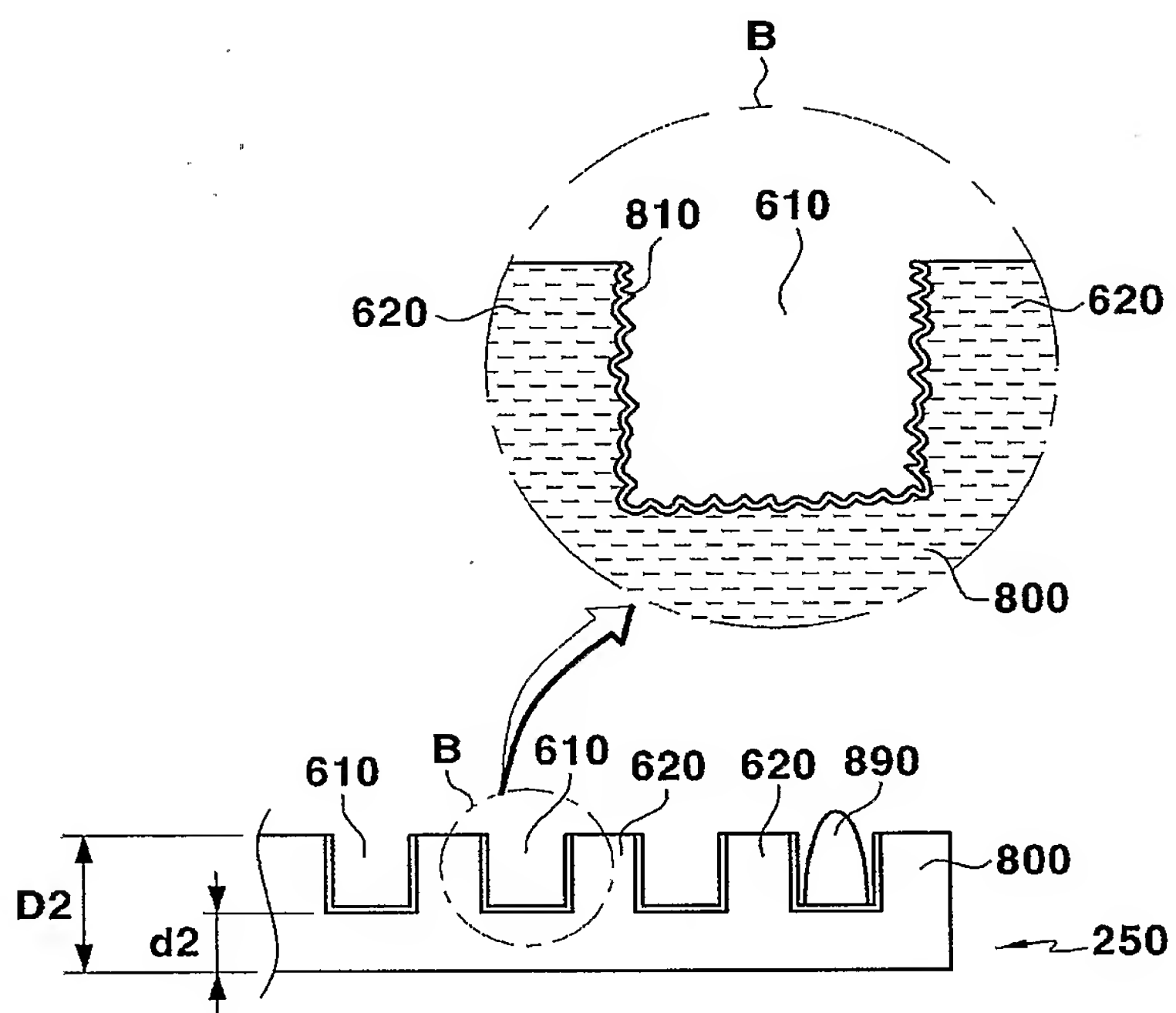
【도 6】



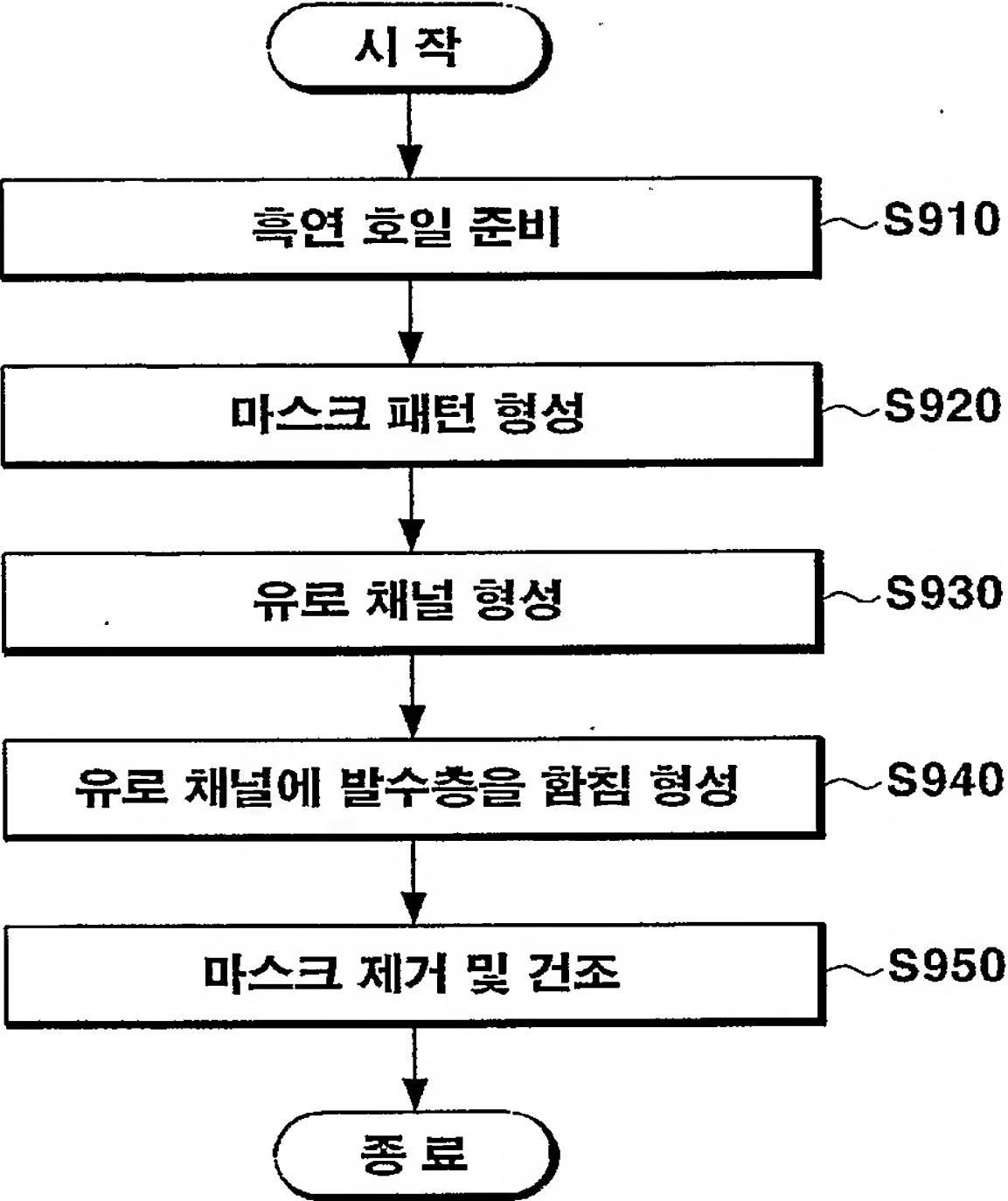
【도 7】



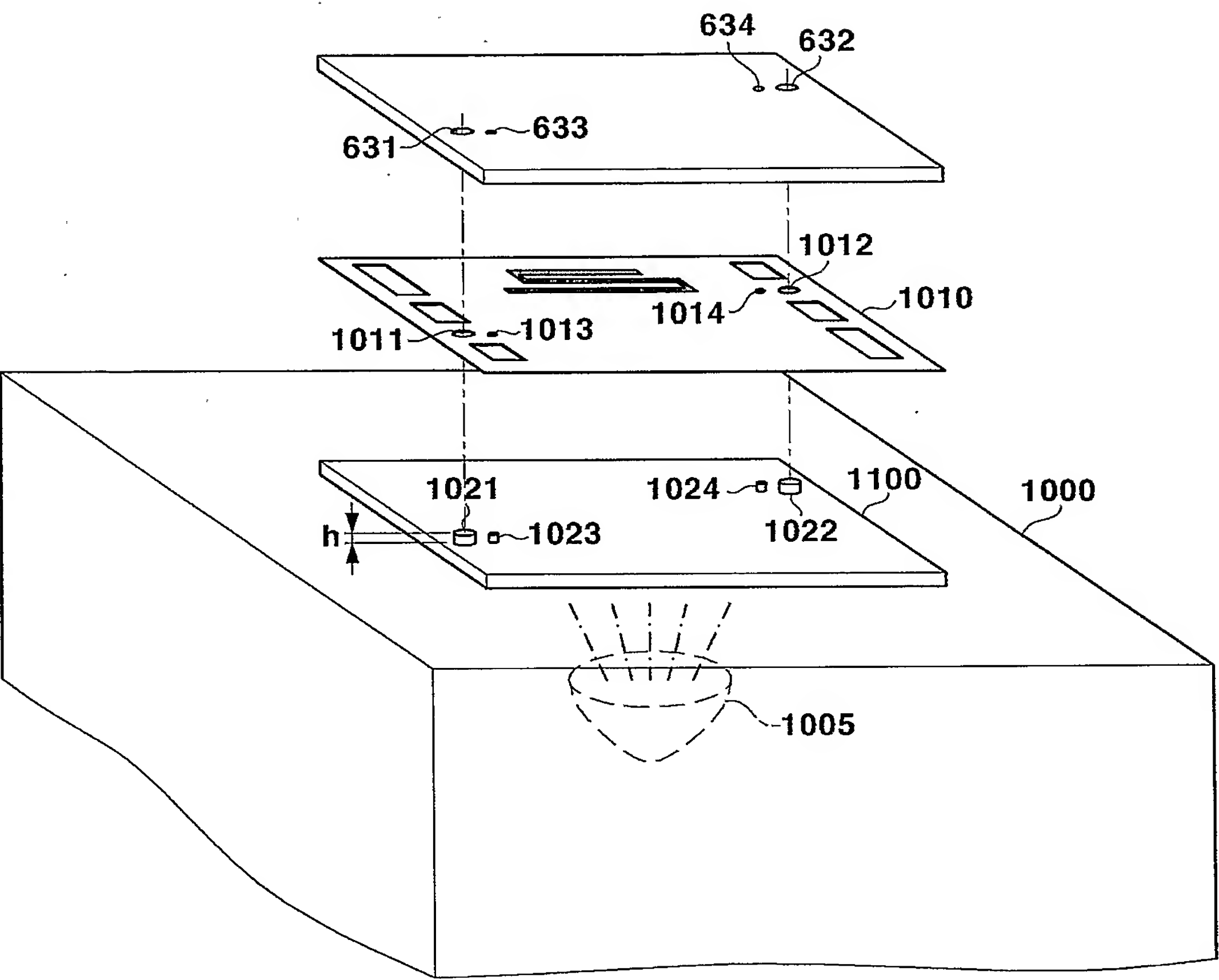
【도 8】



【도 9】



【도 10】



【도 11】

